

Rec'd PCT/PTO 19 AUG 2004

10/505360  
PCT/EP 03/01322

**BUNDESREPUBLIK DEUTSCHLAND**



BEST AVAILABLE COPY



**Prioritätsbescheinigung über die Einreichung  
einer Patentanmeldung**

**Aktenzeichen:** 102 07 773.8

**Anmeldetag:** 23. Februar 2002

**Anmelder/Inhaber:** BAYER AKTIENGESELLSCHAFT, Leverkusen/DE

**Bezeichnung:** Mikrobizide Mittel auf Basis von Biphenylbenzamid-Derivaten

**IPC:** C 07 C, A 61 K

Die angehefteten Stücke sind eine richtige und genaue Wiedergabe der ursprünglichen Unterlagen dieser Patentanmeldung.

München, den 14. November 2002  
Deutsches Patent- und Markenamt  
Der Präsident  
Im Auftrag

*Summeier*

**PRIORITY DOCUMENT**  
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN  
COMPLIANCE WITH  
RULE 17.1(a) OR (b)

*Wassmaier*

**Mikrobizide Mittel auf Basis von Biphenylbenzamid-Derivaten**

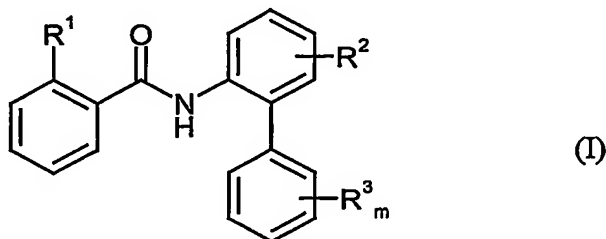
Die vorliegende Erfindung betrifft neue mikrobizide Mittel auf Basis von teilweise be-  
5 kannten Biphenylbenzamid-Derivaten und die Verwendung dieser Stoffe zur Bekämp-  
fung von unerwünschten Mikroorganismen. Außerdem betrifft die Erfindung auch neue  
Biphenylbenzamid-Derivaten und mehrere Verfahren zu deren Herstellung.

Es ist bereits bekannt, dass Biphenylbenzamid-Derivate zur Bekämpfung von Arten des  
10 phytopathogenen Pilzes Botrytis eingesetzt werden können (vgl. EP-A 0 545 099). Die  
Wirksamkeit dieser vorbekannten Verbindungen ist jedoch insbesondere bei niedrigen  
Aufwandmengen nicht in allen Anwendungsgebieten völlig zufriedenstellend.

Weiterhin sind bestimmte Biphenylbenzamid-Derivate bekannt, wie beispielsweise die  
15 Verbindungen *N*-(2'-Fluor-1,1'-biphenyl-2-yl)-2-(trifluormethyl)benzamid und *N*-(4'-  
Fluor-1,1'-biphenyl-2-yl)-2-(trifluormethyl)benzamid (vgl. EP-A 0 545 099).

Über eine breite fungizide Einsetzbarkeit dieser Verbindungen ist bisher nichts be-  
kannt. Weiterhin ist nicht bekannt, inwieweit diese Verbindungen gegen andere mikro-  
20 bielle, z.B. bakterielle, Schädlinge eingesetzt werden können.

Es wurde nun gefunden, dass die teilweise bekannten Biphenylbenzamid-Derivate der  
Formel (I)



25 in welcher

R¹ für Methyl, Trifluormethyl, Chlor, Brom oder Iod steht,

R<sup>2</sup> für Wasserstoff oder Fluor steht,

5 R<sup>3</sup> für Halogen, Cyano, Nitro, C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylthio, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylsulfonyl, C<sub>2</sub>-C<sub>6</sub>-Alkenyl, C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub> Cycloalkyl, oder für C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Halogenalkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Halogenalkoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Halogenalkylthio oder C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Halogenalkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 13 Halogenatomen steht,

m für 1, 2, 3, 4 oder 5 steht, wobei die Reste R<sup>3</sup> gleich oder verschieden sein können, wenn m für 2, 3, 4 oder 5 steht.

10

15

sehr gut zur Bekämpfung von phytopathogenen Schaderregern aus der Klasse der Chytridiomycetes (Unterabteilung der Mastigomycotina), der Klasse der Zygomycetes (Zygomycotina), der Klassen der Hemiascomycetes, Plectomycetes, Pyrenomycetes, Pyrenomycetes, Laboulbeniomyces, Loculoascomycetes (Ascomycotina), sowie aus den Unterabteilungen der Basidiomycotina und der Deuteromycotina, sowie schädlicher Mikroorganismen im Materialschutz geeignet sind.

20

Die Verbindungen der Formel (I) können in Abhängigkeit von der Art der Substituenten als geometrische und/oder optische Isomere oder Isomerengemische unterschiedlicher Zusammensetzung vorliegen. Die Erfindung betrifft sowohl die Verwendung der reinen Isomeren als auch der Isomerengemische.

25

Die erfindungsgemäß verwendbaren Biphenylbenzamid-Derivate sind durch die Formel (I) allgemein definiert.

Bevorzugt verwendbar sind Biphenylbenzamid-Derivate der Formel (I), in welcher

R<sup>1</sup> für Trifluormethyl, Chlor, Brom oder Iod steht,

30

R<sup>2</sup> für Wasserstoff oder Fluor steht,

R<sup>3</sup> für Halogen, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylthio, C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub>-Alkenyl, Cyclopropyl, Cyclobutyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl, oder für C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkoxy oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkylthio mit jeweils 1 bis 9 Halogenatomen steht,

5

m für 1, 2, 3 steht, wobei die Reste R<sup>3</sup> gleich oder verschieden sein können, wenn m für 2 oder 3 steht.

Besonders bevorzugt verwendbar sind Biphenylbenzamid-Derivate der Formel (I), in welcher

10

R<sup>1</sup> für Trifluormethyl oder Iod steht,

R<sup>2</sup> für Wasserstoff steht,

15

R<sup>3</sup> für Fluor, Chlor, Brom, Iod, Methyl, Ethyl, n-, i-Propyl, n-, i-, s-, t-Butyl, Methoxy, Ethoxy, Methylthio, Ethylthio, oder für C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkoxy oder C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkylthio mit jeweils 1 bis 5 Halogenatomen steht,

20

m für 1, 2 steht, wobei die Reste R<sup>3</sup> gleich oder verschieden sein können, wenn m für 2 steht.

Ganz besonders bevorzugt verwendbar sind Biphenylbenzamid-Derivate der Formel (I), in welcher

25

R<sup>1</sup> für Trifluormethyl oder Iod steht,

R<sup>2</sup> für Wasserstoff steht,

30

$R^3$  für Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Methoxy, Methylthio, Trifluormethyl, Trifluormethoxy oder Trifluormethylthio steht,

5       $m$  für 1, 2 steht, wobei die Reste  $R^3$  gleich oder verschieden sein können, wenn  $m$  für 2 steht.

Weiterhin ganz besonders bevorzugt verwendbar sind Verbindungen der Formel (I), in welcher  $R^1$  für Trifluormethyl steht.

10      Weiterhin ganz besonders bevorzugt verwendbar sind Verbindungen der Formel (I), in welcher  $R^1$  für Iod steht.

Weiterhin ganz besonders bevorzugt verwendbar sind Verbindungen der Formel (I), in welcher  $R^2$  für Wasserstoff steht.

15      Weiterhin ganz besonders bevorzugt verwendbar sind Verbindungen der Formel (I), in welcher  $R^2$  für Fluor steht.

20      Weiterhin ganz besonders bevorzugt verwendbar sind Verbindungen der Formel (I), in welcher  $R^3$  für Fluor, Chlor oder Brom steht.

Weiterhin ganz besonders bevorzugt verwendbar sind Verbindungen der Formel (I), in welcher  $R^3$  für Trifluormethyl, Trifluormethoxy oder Trifluormethylthio steht.

25      Weiterhin ganz besonders bevorzugt verwendbar sind Verbindungen der Formel (I), in welcher  $m$  für 2 steht.

30      Die erfindungsgemäß verwendbaren Biphenylbenzamid-Derivate der Formel (I) eignen sich sehr gut zur Bekämpfung von phytopathogenen Schaderregern der Klassen Chytridiomycetes, Zygomycetes, Hemiascomycetes, Plectomycetes, Pyrenomycetes, Laboulbeniomycetes, Loculoascomycetes, Basidio-

mycetes und Deuteromycetes, sowie schädlicher Mikroorganismen im Materialschutz wie Pseudomonadaceae, Rhizobiaceae, Enterobacteriaceae, Corynebacteriaceae und Streptomycetaceae.

5 Beispielhaft aber nicht begrenzend seien einige Erreger von pilzlichen und bakteriellen Erkrankungen, die unter die oben aufgezählten Oberbegriffe fallen, genannt:

Xanthomonas-Arten, wie beispielsweise *Xanthomonas campestris* pv. *oryzae*;

Pseudomonas-Arten, wie beispielsweise *Pseudomonas syringae* pv. *lachrymans*;

Erwinia-Arten, wie beispielsweise *Erwinia amylovora*;

10 Erysiphe-Arten, wie beispielsweise *Erysiphe graminis*;

Sphaerotheca-Arten, wie beispielsweise *Sphaerotheca fuliginea*;

Podosphaera-Arten, wie beispielsweise *Podosphaera leucotricha*;

Venturia-Arten, wie beispielsweise *Venturia inaequalis*;

Pyrenophora-Arten, wie beispielsweise *Pyrenophora teres* oder *P. graminea*

15 (Konidienform: *Drechslera*, Syn: *Helminthosporium*);

Cochliobolus-Arten, wie beispielsweise *Cochliobolus sativus*

(Konidienform: *Drechslera*, Syn: *Helminthosporium*);

Uromyces-Arten, wie beispielsweise *Uromyces appendiculatus*;

Puccinia-Arten, wie beispielsweise *Puccinia recondita*;

20 Tilletia-Arten, wie beispielsweise *Tilletia caries*;

Ustilago-Arten, wie beispielsweise *Ustilago nuda* oder *Ustilago avenae*;

Pellicularia-Arten, wie beispielsweise *Pellicularia sasakii*;

Pyricularia-Arten, wie beispielsweise *Pyricularia oryzae*;

Fusarium-Arten, wie beispielsweise *Fusarium culmorum*;

25 Septoria-Arten, wie beispielsweise *Septoria nodorum*;

Leptosphaeria-Arten, wie beispielsweise *Leptosphaeria nodorum*;

Cercospora-Arten, wie beispielsweise *Cercospora canescens*;

Alternaria-Arten, wie beispielsweise *Alternaria brassicae*;

Pseudocercospora-Arten, wie beispielsweise *Pseudocercospora herpotrichoides*.

Bevorzugt lassen sich erfindungsgemäß folgende Erreger von pilzlichen und bakteriellen Erkrankungen durch Verwendung der Verbindungen der Formel (I) bekämpfen:

Pseudomonas-Arten, wie beispielsweise *Pseudomonas syringae* pv. *lachrymans*;

5 Erysiphe-Arten, wie beispielsweise *Erysiphe graminis*;

Sphaerotheca-Arten, wie beispielsweise *Sphaerotheca fuliginea*;

Podosphaera-Arten, wie beispielsweise *Podosphaera leucotricha*;

Venturia-Arten, wie beispielsweise *Venturia inaequalis*;

Pyrenophora-Arten, wie beispielsweise *Pyrenophora teres* oder *P. graminea*

10 (Konidienform: *Drechslera*, Syn: *Helminthosporium*);

Cochliobolus-Arten, wie beispielsweise *Cochliobolus sativus*

(Konidienform: *Drechslera*, Syn: *Helminthosporium*);

Uromyces-Arten, wie beispielsweise *Uromyces appendiculatus*;

Puccinia-Arten, wie beispielsweise *Puccinia recondita*;

15 Tilletia-Arten, wie beispielsweise *Tilletia caries*;

Ustilago-Arten, wie beispielsweise *Ustilago nuda* oder *Ustilago avenae*;

Pellicularia-Arten, wie beispielsweise *Pellicularia sasakii*;

Pyricularia-Arten, wie beispielsweise *Pyricularia oryzae*;

Septoria-Arten, wie beispielsweise *Septoria nodorum*;

20 Leptosphaeria-Arten, wie beispielsweise *Leptosphaeria nodorum*;

Cercospora-Arten, wie beispielsweise *Cercospora canescens*;

Alternaria-Arten, wie beispielsweise *Alternaria brassicae*;

Pseudocercospora-Arten, wie beispielsweise *Pseudocercospora herpotrichoides*.

25 Besonders bevorzugt lassen sich erfindungsgemäß folgende Erreger von pilzlichen und bakteriellen Erkrankungen durch Verwendung der Verbindungen der Formel (I) bekämpfen:

Sphaerotheca-Arten, wie beispielsweise *Sphaerotheca fuliginea*;

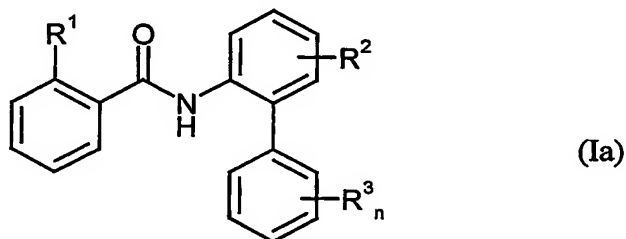
30 Podosphaera-Arten, wie beispielsweise *Podosphaera leucotricha*;

Venturia-Arten, wie beispielsweise *Venturia inaequalis*;

- Uromyces-Arten, wie beispielsweise Uromyces appendiculatus;  
 Puccinia-Arten, wie beispielsweise Puccinia recondita;  
 Pellicularia-Arten, wie beispielsweise Pellicularia sasakii;  
 Cercospora-Arten, wie beispielsweise Cercospora canescens;  
 5 Alternaria-Arten, wie beispielsweise Alternaria brassicae.

Die erfindungsgemäß verwendbaren Biphenylbenzamid-Derivate der Formel (I) sind teilweise bekannt (vgl. EP-A 0 545 099).

- 10 Neu sind die Biphenylbenzamid-Derivate der Formel (Ia) (Gruppe 1)



in welcher

- 15 R¹ für Methyl, Trifluormethyl, Chlor, Brom oder Iod steht,
- R² für Wasserstoff oder Fluor steht,
- 20 R³ für Halogen, Cyano, Nitro, C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylthio, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylsulfonyl, C<sub>2</sub>-C<sub>6</sub>-Alkenyl, C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub> Cycloalkyl, oder für C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Halogenalkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Halogenalkoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Halogenalkylthio oder C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Halogenalkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 13 Halogenatomen steht,
- 25 n für 2, 3, 4 oder 5 steht, wobei die Reste R³ gleich oder verschieden sein können.

Bevorzugt sind Biphenylbenzamid-Derivate der Formel (Ia), in welcher



R<sup>1</sup> für Trifluormethyl, Chlor, Brom oder Iod steht,

R<sup>2</sup> für Wasserstoff oder Fluor steht,

5

R<sup>3</sup> für Halogen, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylthio, C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub>-Alkenyl, Cyclopropyl, Cyclobutyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl, oder für C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkoxy oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkylthio mit jeweils 1 bis 9 Halogenatomen steht,

10

n für 2, 3 steht, wobei die Reste R<sup>3</sup> gleich oder verschieden sein können.

Besonders bevorzugt sind Biphenylbenzamid-Derivate der Formel (Ia), in welcher

15 R<sup>1</sup> für Trifluormethyl oder Iod steht,

R<sup>2</sup> für Wasserstoff steht,

R<sup>3</sup> für Fluor, Chlor, Brom, Iod, Methyl, Ethyl, n-, i-Propyl, n-, i-, s-, t-Butyl, Methoxy, Ethoxy, Methylthio, Ethylthio, oder für C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkoxy oder C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkylthio mit jeweils 1 bis 5 Halogenatomen steht,

20

n für 2 steht, wobei die Reste R<sup>3</sup> gleich oder verschieden sein können.

25

Ganz besonders bevorzugt sind Biphenylbenzamid-Derivate der Formel (Ia), in welcher

R<sup>1</sup> für Trifluormethyl oder Iod steht,

30

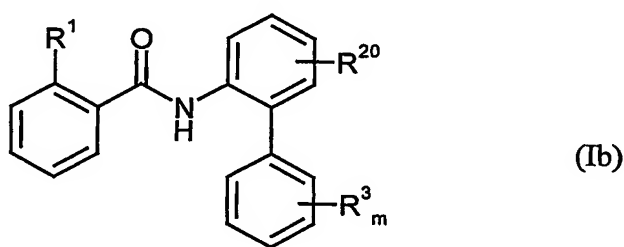
R<sup>2</sup> für Wasserstoff steht,

$R^3$  für Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Methoxy, Methylthio, Trifluormethyl, Trifluormethoxy oder Trifluormethylthio steht,

$n$  für 2 steht, wobei die Reste  $R^3$  gleich oder verschieden sein können.

5

Neu sind ebenfalls Biphenylbenzamid-Derivate der Formel (Ib) (Gruppe 2)



in welcher

10

$R^1$  für Methyl, Trifluormethyl, Chlor, Brom oder Iod steht,

$R^{20}$  für Fluor steht,

15

$R^3$  für Halogen, Cyano, Nitro,  $C_1$ - $C_6$ -Alkyl,  $C_1$ - $C_4$ -Alkoxy,  $C_1$ - $C_4$ -Alkylthio,  $C_1$ - $C_4$ -Alkylsulfonyl,  $C_2$ - $C_6$ -Alkenyl,  $C_3$ - $C_6$ -Cycloalkyl, oder für  $C_1$ - $C_6$ -Halogenalkyl,  $C_1$ - $C_6$ -Halogenalkoxy,  $C_1$ - $C_6$ -Halogenalkylthio oder  $C_1$ - $C_6$ -Halogenalkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 13 Halogenatomen steht,

20

$m$  für 1, 2, 3, 4 oder 5 steht, wobei die Reste  $R^3$  gleich oder verschieden sein können, wenn  $m$  für 2, 3, 4 oder 5 steht.

Bevorzugt sind Biphenylbenzamid-Derivate der Formel (Ib), in welcher

25

$R^1$  für Trifluormethyl, Chlor, Brom oder Iod steht,

$R^{20}$  für Fluor steht,

5  $R^3$  für Halogen,  $C_1$ - $C_4$ -Alkyl,  $C_1$ - $C_4$ -Alkoxy,  $C_1$ - $C_4$ -Alkylthio,  $C_2$ - $C_4$ -Alkenyl, Cyclopropyl, Cyclobutyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl, oder für  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkyl,  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkoxy oder  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkylthio mit jeweils 1 bis 9 Halogenatomen steht,

$m$  für 1, 2, 3 steht, wobei die Reste  $R^3$  gleich oder verschieden sein können, wenn  $m$  für 2 oder 3 steht.

10 Besonders bevorzugt sind Biphenylbenzamid-Derivate der Formel (Ib), in welcher

$R^1$  für Trifluormethyl oder Iod steht,

15  $R^{20}$  für Fluor steht,

$R^3$  für Fluor, Chlor, Brom, Iod, Methyl, Ethyl,  $n$ -,  $i$ -Propyl,  $n$ -,  $i$ -,  $s$ -,  $t$ -Butyl, Methoxy, Ethoxy, Methylthio, Ethylthio, oder für  $C_1$ - $C_2$ -Halogenalkyl,  $C_1$ - $C_2$ -Halogenalkoxy oder  $C_1$ - $C_2$ -Halogenalkylthio mit jeweils 1 bis 5 Halogenatomen steht,

20  $m$  für 1, 2 steht, wobei die Reste  $R^3$  gleich oder verschieden sein können, wenn  $m$  für 2 steht.

25 Ganz besonders bevorzugt sind Biphenylbenzamid-Derivate der Formel (Ib), in welcher

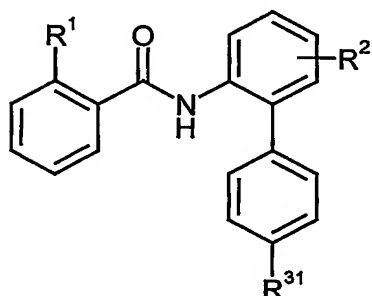
$R^1$  für Trifluormethyl oder Iod steht,

30  $R^{20}$  für Fluor steht,

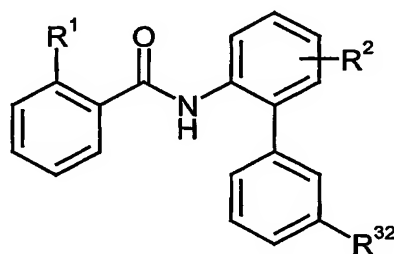
$R^3$  für Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Methoxy, Methylthio, Trifluormethyl, Trifluormethoxy oder Trifluormethylthio steht,

5  $m$  für 1, 2 steht, wobei die Reste  $R^3$  gleich oder verschieden sein können, wenn  $m$  für 2 steht.

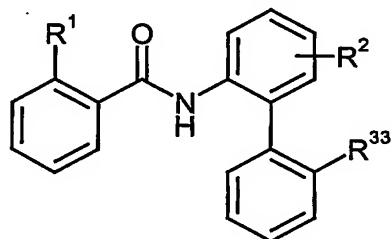
Neu sind ebenfalls Biphenylbenzamid-Derivate der Formeln (Ic) (Gruppe 3), (Id) (Gruppe 4) und (Ie) (Gruppe 5)



(Ic)



(Id)



(Ie)

10

in welchen jeweils

$R^1$  für Methyl, Trifluormethyl, Chlor, Brom oder Iod steht,

15  $R^2$  für Wasserstoff oder Fluor steht,

$R^{31}$ ,  $R^{32}$  und  $R^{33}$  unabhängig voneinander für Halogen, Cyano, Nitro,  $C_1$ - $C_6$ -Alkyl,  $C_1$ - $C_4$ -Alkoxy,  $C_1$ - $C_4$ -Alkylthio,  $C_1$ - $C_4$ -Alkylsulfonyl,  $C_2$ - $C_6$ -Alkenyl,  $C_3$ - $C_6$ -Cycloalkyl, oder für  $C_1$ - $C_6$ -Halogenalkyl,  $C_1$ - $C_6$ -Halogenalkoxy,  $C_1$ - $C_6$ -Halogenalkylthio oder  $C_1$ - $C_6$ -Halogenalkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 13 Halogenatomen stehen,

20

mit der Maßgabe, dass  $R^{31}$  und  $R^{33}$  jeweils nicht für Fluor stehen, wenn  $R^1$  für Trifluormethyl und  $R^2$  für Wasserstoff stehen.

Bevorzugt sind Biphenylbenzamid-Derivate der Formeln (Ic), (Id) und (Ie), in welchen

5

$R^1$  für Trifluormethyl, Chlor, Brom oder Iod steht,

$R^2$  für Wasserstoff oder Fluor steht,

10

$R^{31}$ ,  $R^{32}$  und  $R^{33}$  unabhängig voneinander für Halogen,  $C_1$ - $C_4$ -Alkyl,  $C_1$ - $C_4$ -Alkoxy,  $C_1$ - $C_4$ -Alkylthio,  $C_2$ - $C_4$ -Alkenyl, Cyclopropyl, Cyclobutyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl, oder für  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkyl,  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkoxy oder  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkylthio mit jeweils 1 bis 9 Halogenatomen stehen,

15

mit der Maßgabe, dass  $R^{31}$  und  $R^{33}$  jeweils nicht für Fluor stehen, wenn  $R^1$  für Trifluormethyl und  $R^2$  für Wasserstoff stehen.

Besonders bevorzugt sind Biphenylbenzamid-Derivate der Formeln (Ic), (Id) und (Ie), in welchen jeweils

20

$R^1$  für Trifluormethyl oder Iod steht,

$R^2$  für Wasserstoff steht,

25

$R^{31}$ ,  $R^{32}$  und  $R^{33}$  unabhängig voneinander für Fluor, Chlor, Brom, Iod, Methyl, Ethyl, n-, i-Propyl, n-, i-, s-, t-Butyl, Methoxy, Ethoxy, Methylthio, Ethylthio, oder für  $C_1$ - $C_2$ -Halogenalkyl,  $C_1$ - $C_2$ -Halogenalkoxy oder  $C_1$ - $C_2$ -Halogenalkylthio mit jeweils 1 bis 5 Halogenatomen stehen,

30

mit der Maßgabe, dass  $R^{31}$  und  $R^{33}$  jeweils nicht für Fluor stehen, wenn  $R^1$  für Trifluormethyl und  $R^2$  für Wasserstoff stehen.

Ganz besonders bevorzugt sind Biphenylbenzamid-Derivate der Formeln (Ic), (Id) und (Ie), in welchen jeweils

- 5       $R^1$     für Trifluormethyl oder Iod steht,  
       $R^2$     für Wasserstoff steht,

$R^{31}$ ,  $R^{32}$  und  $R^{33}$  unabhängig voneinander für Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Methoxy, Methylthio, Trifluormethyl, Trifluormethoxy oder Trifluormethylthio stehen,

10

mit der Maßgabe, dass  $R^{31}$  und  $R^{33}$  jeweils nicht für Fluor stehen, wenn  $R^1$  für Trifluormethyl und  $R^2$  für Wasserstoff stehen.

15

Weiterhin wurde gefunden, dass die neuen Biphenylbenzamid-Derivate der Formeln (Ia), (Ib), (Ic), (Id) und (Ie) sehr gute mikrobizide Eigenschaften besitzen und zur Bekämpfung unerwünschter Mikroorganismen sowohl im Pflanzenschutz als auch im Materialschutz verwendbar sind.

20

Die oben aufgeführten allgemeinen oder in Vorzugsbereichen aufgeführten Restdefinitionen bzw. Erläuterungen können auch untereinander, also zwischen den jeweiligen Bereichen und Vorzugsbereichen beliebig kombiniert werden. Sie gelten für die Endprodukte sowie für die Vor- und Zwischenprodukte entsprechend. Außerdem können auch einzelne Definitionen entfallen.

25

Gesättigte Kohlenwasserstoffreste wie Alkyl können, auch in Verbindung mit Heteroatomen, wie z.B. in Alkoxy, soweit möglich, jeweils geradkettig oder verzweigt sein.

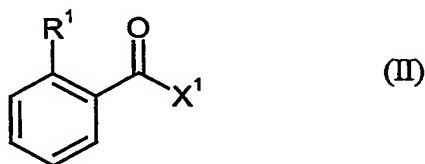
30

Durch Halogen substituierte Reste, z.B. Halogenalkyl, sind einfach oder mehrfach bis zur maximal möglichen Substituentenzahl halogeniert. Bei mehrfacher Halogenie-

rung können die Halogenatome gleich oder verschieden sein. Halogen steht dabei für Fluor, Chlor, Brom oder Iod, insbesondere für Fluor, Chlor oder Brom.

5 Biphenylbenzamid-Derivate der Formeln (Ia), (Ib), (Ic), (Id) und (Ie) sind jeweils Untergruppen der erfindungsgemäß verwendbaren Verbindungen der Formel (I). Diese Verbindungen lassen sich auf grundsätzlich gleiche Weise herstellen. Daher wird im folgenden exemplarisch die Herstellung der Verbindungen der Formel (I) beschrieben. Verbindungen der Formel (I) lassen sich herstellen, indem man

10 A) Benzoylhalogenide der Formel (II)



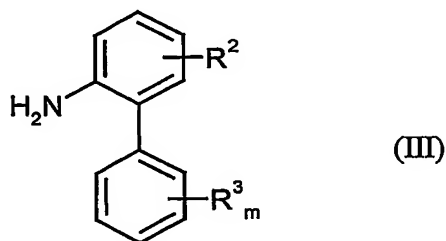
in welcher

$R^1$  die oben angegebenen Bedeutungen hat,

15

$X^1$  für Halogen steht,

mit Anilinderivaten der Formel (III)



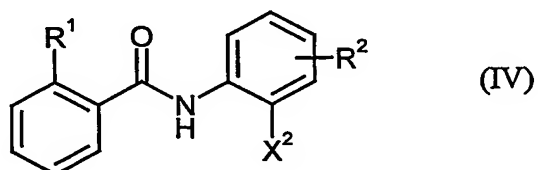
20

in welcher

$R^2$ ,  $R^3$  und m die oben angegebenen Bedeutungen haben,

gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umgesetzt, oder

B) Halogenbenzamide der Formel (IV)

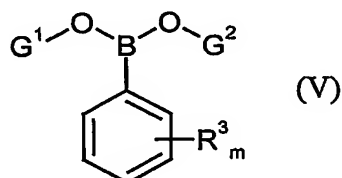


in welcher

$R^1$  und  $R^2$  die oben angegebenen Bedeutungen haben,

$X^2$  für Brom oder Iod steht,

mit Boronsäurederivaten der Formel (V)



in welcher

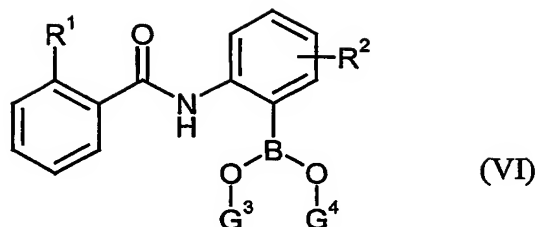
$R^3$  und  $m$  die oben angegebenen Bedeutungen haben,

$G^1$  und  $G^2$  jeweils für Wasserstoff oder zusammen für Tetramethylethylen stehen,

in Gegenwart eines Katalysators, gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umgesetzt, oder

C) Benzamid-Boronsäure-Derivate der Formel (VI)



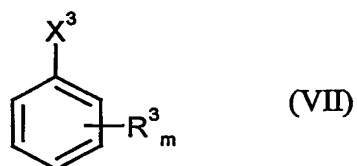


in welcher

$R^1$  und  $R^2$  die oben angegebenen Bedeutungen haben,

5  $G^3$  und  $G^4$  jeweils für Wasserstoff oder zusammen für Tetramethylethylen stehen,

mit Halogenbenzolderivaten der Formel (VII)



10 in welcher

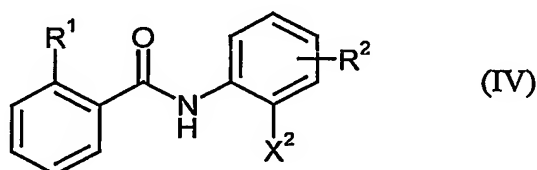
$R^3$  und  $m$  die oben angegebenen Bedeutungen haben und

$X^3$  für Brom, Iod oder Trifluormethylsulfonyloxy steht,

15

in Gegenwart eines Katalysators, gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umgesetzt, oder

20 D) Halogenbenzamide der Formel (IV)



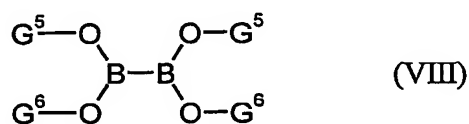
in welcher

$R^1$  und  $R^2$  die oben angegebenen Bedeutungen haben,

$X^2$  für Brom oder Iod steht,

5

in einer ersten Stufe mit einem Diboran-Derivat der Formel (VIII)



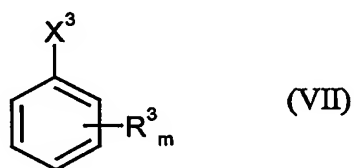
in welcher

10

G<sup>5</sup> und G<sup>6</sup> jeweils für Alkyl oder gemeinsam für Alkandiyl stehen,

in Gegenwart eines Katalysators, gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umgesetzt und ohne Aufarbeitung in einer zweiten Stufe mit Halogenbenzolderivaten der Formel (VII)

15



in welcher

$\mathbb{R}^3$  und  $m$  die oben angegebenen Bedeutungen haben und

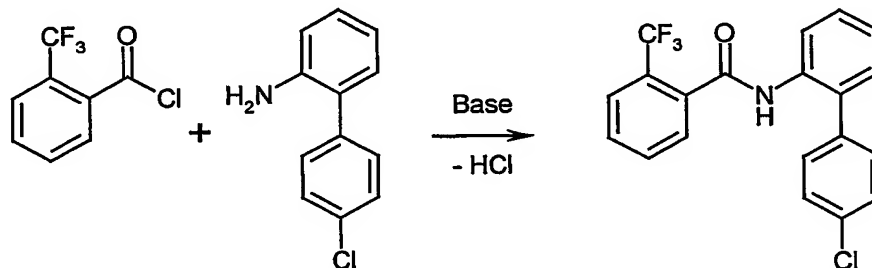
20

$X^3$  für Brom, Iod oder Trifluormethylsulfonyloxy steht,

in Gegenwart eines Katalysators, gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umgesetzt.

25

Verwendet man beispielsweise 2-(Trifluormethyl)benzoylchlorid und 4'-Chlor-1,1'-biphenyl-2-amin als Ausgangsstoffe sowie ein Base, so kann der Verlauf des erfindungsgemäßen Verfahrens A) durch folgende Reaktionsgleichung veranschaulicht werden:



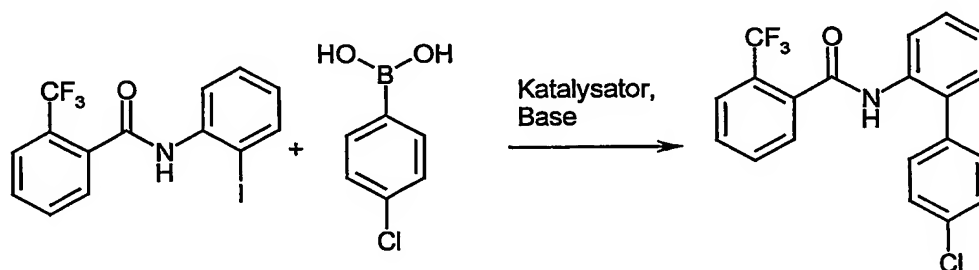
Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens A) als Ausgangsstoffe benötigten Benzoylhalogenide sind durch die Formel (II) allgemein definiert. In dieser Formel (II) steht  $R^1$  bevorzugt, besonders bevorzugt bzw. ganz besonders bevorzugt für diejenigen Bedeutungen, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäß verwendbaren Verbindungen der Formel (I) als bevorzugt, besonders bevorzugt usw. für diesen Rest angegeben wurden.  $X^1$  steht bevorzugt für Chlor.

Die Benzoylhalogenide der Formel (II) sind bekannt und/oder lassen sich nach bekannten Verfahren herstellen (vergleiche z.B. EP-A 0 276 177).

Die weiterhin zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens A) als Ausgangsstoffe benötigten Anilinderivate sind durch die Formel (III) allgemein definiert. In dieser Formel (III) stehen  $R^2$ ,  $R^3$  und  $m$  bevorzugt, besonders bevorzugt bzw. ganz besonders bevorzugt für diejenigen Bedeutungen, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäß verwendbaren Verbindungen der Formel (I) als bevorzugt, besonders bevorzugt usw. für diese Reste angegeben wurden.

Die Anilinderivate der Formel (III) sind bekannt und/oder lassen sich nach bekannten Methoden herstellen (vgl. z.B. Bull. Korean Chem. Soc. 2000, 21, 165-166; Chem. Pharm. Bull. 1992, 40, 240-4; JP 9132567).

Verwendet man beispielsweise *N*-(2-Iodphenyl)-2-(trifluormethyl)benzamid und 4-Chlorphenylboronsäure als Ausgangsstoffe sowie einen Katalysator und eine Base, so kann der Verlauf des erfindungsgemäßen Verfahrens b) kann durch folgende Reaktionsgleichung veranschaulicht werden:



5

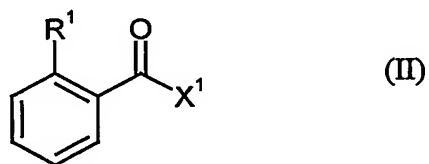
10

Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens B) als Ausgangsstoffe benötigten Halogenbenzamide sind durch die Formel (IV) allgemein definiert. In dieser Formel (IV) stehen  $\text{R}^1$  und  $\text{R}^2$  bevorzugt, besonders bevorzugt bzw. ganz besonders bevorzugt für diejenigen Bedeutungen, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäß verwendbaren Verbindungen der Formel (I) als bevorzugt, besonders bevorzugt usw. für diese Reste angegeben wurden.  $\text{X}^2$  steht bevorzugt für Brom oder Iod.

15

Die Halogenbenzamide der Formel (IV) sind noch nicht bekannt. Sie sind neue chemische Verbindungen und ebenfalls Gegenstand der vorliegenden Anmeldung. Sie werden erhalten, indem man

E) Benzoylhalogenide der Formel (II)



20

in welcher

$\text{R}^1$  die oben angegebenen Bedeutungen hat,

$\text{X}^1$  für Halogen steht,

mit 2-Bromanilin oder 2-Iodanilin umgesetzt.

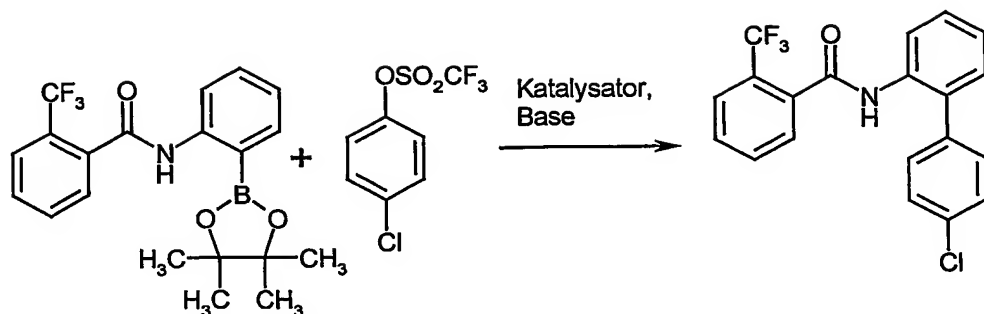
5 Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens E) als Ausgangsstoffe benötigten Benzoylhalogenide der Formel (II) sind bereits weiter oben im Zusammenhang mit dem erfindungsgemäßen Verfahren A) beschrieben worden.

10 Die weiterhin zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens E) als Ausgangsstoffe benötigten Stoffe 2-Bromanilin oder 2-Iodanilin sind bekannte Syntheschemikalien.

15 Die weiterhin zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens B) als Ausgangsstoffe benötigten Boronsäurederivate sind durch die Formel (V) allgemein definiert. In dieser Formel (V) stehen  $R^3$  und  $m$  bevorzugt, besonders bevorzugt bzw. ganz besonders bevorzugt für diejenigen Bedeutungen, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäß verwendbaren Verbindungen der Formel (I) als bevorzugt, besonders bevorzugt usw. für diese Reste angegeben wurden.  $G^1$  und  $G^2$  stehen bevorzugt jeweils für Wasserstoff oder zusammen für Tetramethylethylen.

20 Boronsäurederivate der Formel (V) sind bekannte Syntheschemikalien. Sie können auch unmittelbar vor der Reaktion direkt aus Halogenbenzolderivaten und Boronsäureestern hergestellt und ohne Aufarbeitung weiter umgesetzt werden.

25 Verwendet man beispielsweise *N*-[2-(4,4,5,5-Tetramethyl-1,3,2-dioxaborolan-2-yl)-phenyl]-2-(trifluormethyl)benzamid und 4-Chlorphenyl-trifluormethansulfonsäure als Ausgangsstoffe sowie einen Katalysator und eine Base, so kann der Verlauf des erfindungsgemäßen Verfahrens C) kann durch folgende Reaktionsgleichung veranschaulicht werden:

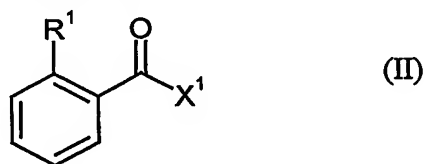


Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens C) als Ausgangsstoffe benötigten Benzamid-Boronsäure-Derivate sind durch die Formel (VI) allgemein definiert. In dieser Formel (VI) stehen  $R^1$  und  $R^2$  bevorzugt, besonders bevorzugt bzw. ganz besonders bevorzugt für diejenigen Bedeutungen, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäß verwendbaren Verbindungen der Formel (I) als bevorzugt, besonders bevorzugt usw. für diese Reste angegeben wurden.  $G^3$  und  $G^4$  stehen bevorzugt jeweils für Wasserstoff oder zusammen für Tetramethylethylen.

Die Benzamid-Boronsäure-Derivate der Formel (VI) sind noch nicht bekannt. Sie sind neue chemische Verbindungen und ebenfalls Gegenstand der vorliegenden Anmeldung.

Sie werden erhalten, indem man

F) Benzoylhalogenide der Formel (II)

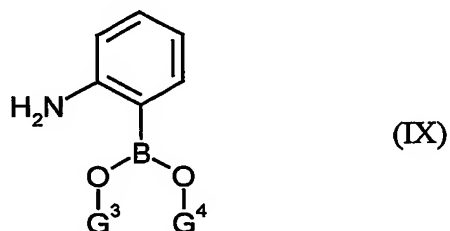


in welcher

$R^1$  die oben angegebenen Bedeutungen hat,

$X^1$  für Halogen steht,

mit Anilinboronsäurederivaten der Formel (IX)



in welcher

5

$G^3$  und  $G^4$  die oben angegebenen Bedeutungen haben,

gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umgesetzt.

10

Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens F) als Ausgangsstoffe benötigten Benzoylhalogenide der Formel (II) sind bereits weiter oben im Zusammenhang mit dem erfindungsgemäßen Verfahren a) beschrieben worden.

15

Die weiterhin zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens F) als Ausgangsstoffe benötigten Anilinboronsäurederivate sind durch die Formel (IX) allgemein definiert. In dieser Formel (IX) stehen  $G^3$  und  $G^4$  bevorzugt jeweils für Wasserstoff oder zusammen für Tetramethylethylen.

20

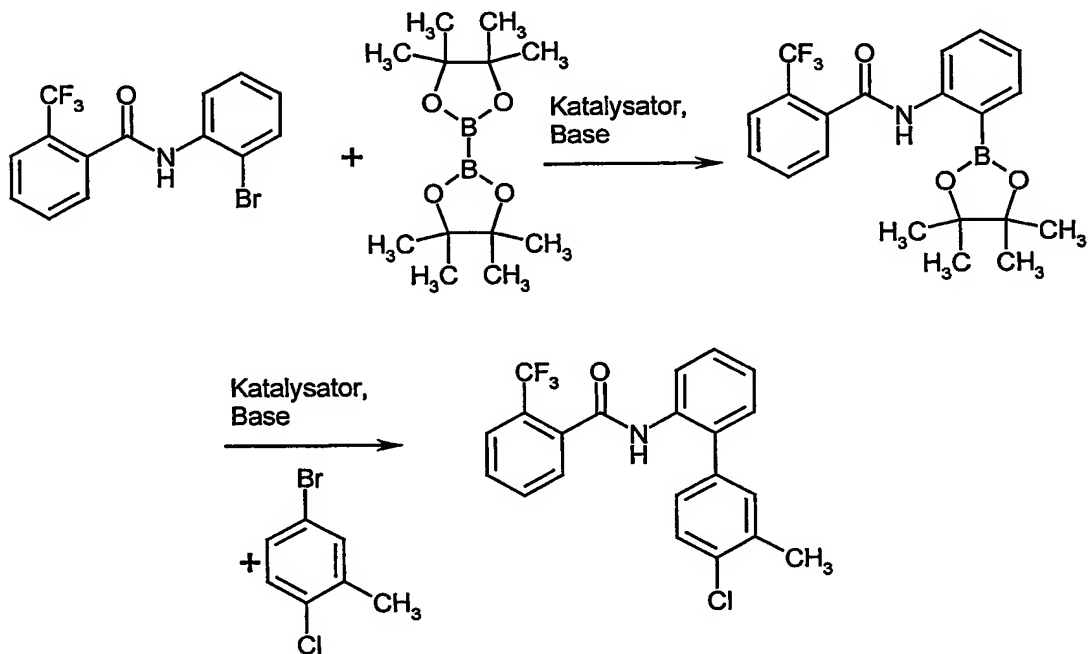
Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens F) als Ausgangsstoffe benötigten Anilinboronsäurederivate der Formel (IX) sind bekannte Syntheschemikalien.

25

Die weiterhin zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens C) als Ausgangsstoffe benötigten Halogenbenzolderivate sind durch die Formel (VII) allgemein definiert. In dieser Formel (VII) stehen  $R^3$  und  $m$  bevorzugt, besonders bevorzugt bzw. ganz besonders bevorzugt für diejenigen Bedeutungen, die bereits im Zu-

sammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäß verwendbaren Verbindungen der Formel (I) als bevorzugt, besonders bevorzugt usw. für diese Reste angegeben wurden.  $X^3$  steht bevorzugt für Brom, Iod oder Trifluormethylsulfonyloxy.

- 5 Verwendet man beispielsweise *N*-(2-Bromphenyl)-2-(trifluormethyl)-benzamid und 4,4,4',4',5,5,5',5'-Octamethyl-2,2'-bi-1,3,2-dioxaborolan in der ersten Stufe und weiterhin 4-Brom-1-chlor-2-methylbenzol in der zweiten Stufe als Ausgangsstoffe, sowie in jeder Stufe einen Katalysator und eine Base, so kann der Verlauf des erfindungsgemäßen Verfahrens D) durch folgende Reaktionsgleichung veranschaulicht werden:



Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens D) als Ausgangsstoffe benötigten Halogenbenzamide der Formel (IV) sind bereits weiter oben im Zusammenhang mit dem erfindungsgemäßen Verfahren B) beschrieben worden.

15

Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens D) weiterhin als Ausgangsstoffe benötigten Diboran-Derivate sind durch die Formel (VIII) allgemein definiert. In dieser Formel (VIII) stehen  $G^5$  und  $G^6$  bevorzugt jeweils für Methyl, Ethyl, Propyl, Butyl oder gemeinsam für Tetramethylethylen.



Die Diboran-Derivate der Formel (VIII) sind allgemein bekannte Syntheschemikalien.

5 Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens D) weiterhin als Ausgangsstoffe benötigten Halogenbenzolderivaten der Formel (VII) sind bereits weiter oben im Zusammenhang mit dem erfindungsgemäßen Verfahren C) beschrieben worden.

10 Als Verdünnungsmittel zur Durchführung der erfindungsgemäßen Verfahrens A), E) und F) kommen alle inerten organischen Lösungsmittel in Betracht. Hierzu gehören vorzugsweise aliphatische, alicyclische oder aromatische Kohlenwasserstoffe, wie beispielsweise Petrolether, Hexan, Heptan, Cyclohexan, Methylcyclohexan, Benzol, Toluol, Xylol oder Decalin; halogenierte Kohlenwasserstoffe, wie beispielsweise  
15 Chlorbenzol, Dichlorbenzol, Dichlormethan, Chloroform, Tetrachlormethan, Dichlorethan oder Trichlorethan; Ether, wie Diethylether, Diisopropylether, Methyl-t-butylether, Methyl-t-Amylether, Dioxan, Tetrahydrofuran, 1,2- Dimethoxyethan, 1,2-Diethoxyethan oder Anisol oder Amide, wie N,N-Dimethylformamid, N,N-Dimethylacetamid, N-Methylformanilid, N-Methylpyrrolidon oder Hexamethylphosphorsäuretriamid.

20 Die erfindungsgemäßen Verfahren A), E) und F) werden gegebenenfalls in Gegenwart eines geeigneten Säureakzeptors durchgeführt. Als solche kommen alle üblichen anorganischen oder organischen Basen infrage. Hierzu gehören vorzugsweise Erdalkalimetall- oder Alkalimetallhydride, -hydroxide, -amide, -alkoholate, -acetate,  
25 -carbonate oder -hydrogencarbonate, wie beispielsweise Natriumhydrid, Natriumamid, Natrium-methylat, Natrium-ethylat, Kalium-tert.-butylat, Natriumhydroxid, Kaliumhydroxid, Ammoniumhydroxid, Natriumacetat, Kaliumacetat, Calciumacetat, Ammoniumacetat, Natriumcarbonat, Kaliumcarbonat, Kaliumhydrogencarbonat, Natriumhydrogencarbonat oder Caesiumcarbonat, sowie tertiäre Amine, wie Trimethylamin, Triethylamin, Tributylamin, N,N-Dimethylanilin, N,N-Dimethyl-benzylamin,  
30 Pyridin, N-Methylpiperidin, N-Methylmorpholin, N,N-Dimethylaminopyridin,

Diazabicyclooctan (DABCO), Diazabicyclononen (DBN) oder Diazabicycloundecen (DBU).

5 Die Reaktionstemperaturen können bei der Durchführung der erfindungsgemäßen Verfahren A), E) und F) in einem größeren Bereich variiert werden. Im allgemeinen arbeitet man bei Temperaturen von 0°C bis 150°C, vorzugsweise bei Temperaturen von 20°C bis 110°C.

10 Zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens A) zur Herstellung der Verbindungen der Formel (I) setzt man pro Mol des Benzoylhalogenides der Formel (II) im allgemeinen 0,2 bis 5 Mol, vorzugsweise 0,5 bis 2 Mol an Anilinderivat der Formel (III) ein. Die Aufarbeitung erfolgt nach üblichen Methoden.

15 Zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens E) zur Herstellung der Verbindungen der Formel (III) setzt man pro Mol des Benzoylhalogenides der Formel (II) im allgemeinen 0,2 bis 5 Mol, vorzugsweise 0,5 bis 2 Mol an 2-Bromanilin oder 2-Iodanilin ein. Die Aufarbeitung erfolgt nach üblichen Methoden.

20 Zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens F) zur Herstellung der Verbindungen der Formel (VI) setzt man pro Mol des Benzoylhalogenides der Formel (II) im allgemeinen 0,2 bis 5 Mol, vorzugsweise 0,5 bis 2 Mol an Anilinboronsäurederivat der Formel (IX) ein. Die Aufarbeitung erfolgt nach üblichen Methoden.

25 Als Verdünnungsmittel zur Durchführung der erfindungsgemäßen Verfahren B), C) und D) kommen alle inerten organischen Lösungsmittel in Betracht. Hierzu gehören vorzugsweise aliphatische, alicyclische oder aromatische Kohlenwasserstoffe, wie beispielsweise Petrolether, Hexan, Heptan, Cyclohexan, Methylcyclohexan, Benzol, Toluol, Xylol oder Decalin; Ether, wie Diethylether, Diisopropylether, Methyl-t-butylether, Methyl-t-Amylether, Dioxan, Tetrahydrofuran, 1,2-Dimethoxyethan, 1,2-Diethoxyethan oder Anisol; Nitrile, wie Acetonitril, Propionitril, n- oder i-Butyronitril oder Benzonitril; Amide, wie N,N-Dimethylformamid, N,N-Dimethylacetamid,

30

N-Methylformanilid, N-Methylpyrrolidon oder Hexamethylphosphorsäuretriamid; Ester wie Essigsäuremethylester oder Essigsäureethylester; Sulfoxide, wie Dimethylsulfoxid; Sulfone, wie Sulfolan; Alkohole, wie Methanol, Ethanol, n- oder i-Propanol, n-, i-, sek- oder tert-Butanol, Ethandiol, Propan-1,2-diol, Ethoxyethanol, Methoxyethanol, Diethylenglykolmonomethylether, Diethylenglykolmonoethylether, deren Gemische mit Wasser oder reines Wasser.

Die Reaktionstemperaturen können bei der Durchführung der erfindungsgemäßen Verfahrens B), C) und D) in einem größeren Bereich variiert werden. Im allgemeinen arbeitet man bei Temperaturen von 0°C bis 150°C, vorzugsweise bei Temperaturen von 20°C bis 110°C.

Die erfindungsgemäßen Verfahren B), C) und D) werden gegebenenfalls in Gegenwart eines geeigneten Säureakzeptors durchgeführt. Als solche kommen alle üblichen anorganischen oder organischen Basen infrage. Hierzu gehören vorzugsweise Erdalkalimetall- oder Alkalimetallhydride, -hydroxide, -amide, -alkoholate, -acetate, fluoride, phosphate, -carbonate oder -hydrogencarbonate, wie beispielsweise Natriumhydrid, Natriumamid, Lithiumdiisopropylamid, Natrium-methylat, Natrium-ethylat, Kalium-tert.-butylat, Natriumhydroxid, Kaliumhydroxid, Natriumacetat, Natriumphosphat, Kaliumphosphat, Kaliumfluorid, Cäsiumfluorid, Natriumcarbonat, Kaliumcarbonat, Kaliumhydrogencarbonat, Natriumhydrogencarbonat oder Cäsiumcarbonat, sowie tertiäre Amine, wie Trimethylamin, Triethylamin, Tributylamin, N,N-Dimethylanilin, N,N-Dimethyl-benzylamin, Pyridin, N-Methylpiperidin, N-Methylmorpholin, N,N-Dimethylaminopyridin, Diazabicyclooctan (DABCO), Diazabicyclononen (DBN) oder Diazabicycloundecen (DBU).

Die erfindungsgemäßen Verfahren B), C) und D) werden in Gegenwart eines Katalysators, wie beispielsweise eines Palladiumsalzes oder -komplexes, durchgeführt. Hierzu kommen vorzugsweise Palladiumchlorid, Palladiumacetat, Tetrakis-(triphenylphosphin)-Palladium, Bis-(triphenylphosphin)-Palladiumdichlorid oder (1,1'-Bis-(diphenylphosphino)ferrocenpalladium(II)chlorid) infrage.

Es kann auch ein Palladiumkomplex in der Reaktionsmischung erzeugt werden, wenn man ein Palladiumsalz und ein Komplexligand, wie z.B. Triethylphosphan, Tri-tert-butylphosphan, Tricyclohexylphosphan, 2-(Dicyclohexylphosphan)-biphenyl, 2-(Di-tert-butylphosphan)-biphenyl, 2-(Dicyclohexylphosphan)-2'-(N,N-dimethylamino)-biphenyl, Triphenylphosphan, Tris-(o-tolyl)-phosphan, Natrium-3-(Diphenylphosphino)benzolsulfonat, Tris-2-(methoxyphenyl)-phosphan, 2,2'-Bis-(diphenylphosphan)-1,1'-binaphthyl, 1,4-Bis-(diphenylphosphan)-butan, 1,2-Bis-(diphenylphosphan)-ethan, 1,4-Bis-(dicyclohexylphosphan)-butan, 1,2-Bis-(dicyclohexylphosphan)-ethan, 2-(Dicyclohexylphosphan)-2'-(N,N-dimethylamino)-biphenyl, Bis(diphenylphosphino)ferrocen oder Tris-(2,4-tert-butylphenyl)-phosphit getrennt zur Reaktion zugibt.

Zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens B) zur Herstellung der Verbindungen der Formel (I) setzt man pro Mol des Halogenbenzamid der Formel (IV) im allgemeinen 1 bis 15 Mol, vorzugsweise 2 bis 8 Mol an Boronsäurederivat der Formel (V) ein. Die Aufarbeitung erfolgt nach üblichen Methoden.

Zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens C) zur Herstellung der Verbindungen der Formel (I) setzt man pro Mol des Benzamid-Boronsäure-Derivates der Formel (VI) im allgemeinen 1 bis 15 Mol, vorzugsweise 2 bis 8 Mol an Halogenbenzolderivat der Formel (VII) ein. Die Aufarbeitung erfolgt nach üblichen Methoden.

Zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens D) zur Herstellung der Verbindungen der Formel (I) setzt man pro Mol des Halogenbenzamid der Formel (IV) im allgemeinen 1 bis 15 Mol, vorzugsweise 1 bis 5 Mol an Diboran-Derivat der Formel (VIII) und 1 bis 15 Mol, vorzugsweise 1 bis 5 Mol an Halogenbenzolderivat der Formel (VII) ein.

Die erfindungsgemäßen Verfahren A), B), C), D), E) und F) werden im allgemeinen unter Normaldruck durchgeführt. Es ist jedoch auch möglich, unter erhöhtem oder vermindertem Druck - im allgemeinen zwischen 0,1 bar und 10 bar - zu arbeiten.

5 Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe der Formeln (Ia), (Ib), (Ic), (Id) und (Ie) weisen eine starke mikrobizide Wirkung auf und können zur Bekämpfung von unerwünschten Mikroorganismen, wie Fungi und Bakterien, im Pflanzenschutz und im Materialschutz eingesetzt werden.

10 Fungizide lassen sich im Pflanzenschutz zur Bekämpfung von Plasmodiophoromycetes, Oomycetes, Chytridiomycetes, Zygomycetes, Ascomycetes, Basidiomycetes und Deuteromycetes einsetzen.

15 Bakterizide lassen sich im Pflanzenschutz zur Bekämpfung von Pseudomonadaceae, Rhizobiaceae, Enterobacteriaceae, Corynebacteriaceae und Streptomyetaceae einsetzen.

Beispielhaft aber nicht begrenzend seien einige Erreger von pilzlichen und bakteriellen Erkrankungen, die unter die oben aufgezählten Oberbegriffe fallen, genannt:

20 Xanthomonas-Arten, wie beispielsweise *Xanthomonas campestris* pv. *oryzae*;  
Pseudomonas-Arten, wie beispielsweise *Pseudomonas syringae* pv. *lachrymans*;  
Erwinia-Arten, wie beispielsweise *Erwinia amylovora*;  
Pythium-Arten, wie beispielsweise *Pythium ultimum*;  
Phytophthora-Arten, wie beispielsweise *Phytophthora infestans*;  
25 Pseudoperonospora-Arten, wie beispielsweise *Pseudoperonospora humuli* oder *Pseudoperonospora cubensis*;  
Plasmopara-Arten, wie beispielsweise *Plasmopara viticola*;  
Bremia-Arten, wie beispielsweise *Bremia lactucae*;  
Peronospora-Arten, wie beispielsweise *Peronospora pisi* oder *P. brassicae*;  
30 Erysiphe-Arten, wie beispielsweise *Erysiphe graminis*;  
Sphaerotheca-Arten, wie beispielsweise *Sphaerotheca fuliginea*;

- Podosphaera-Arten, wie beispielsweise Podosphaera leucotricha;  
Venturia-Arten, wie beispielsweise Venturia inaequalis;  
Pyrenophora-Arten, wie beispielsweise Pyrenophora teres oder P. graminea  
(Konidienform: Drechslera, Syn: Helminthosporium);  
5 Cochliobolus-Arten, wie beispielsweise Cochliobolus sativus  
(Konidienform: Drechslera, Syn: Helminthosporium);  
Uromyces-Arten, wie beispielsweise Uromyces appendiculatus;  
Puccinia-Arten, wie beispielsweise Puccinia recondita;  
Sclerotinia-Arten, wie beispielsweise Sclerotinia sclerotiorum;  
10 Tilletia-Arten, wie beispielsweise Tilletia caries;  
Ustilago-Arten, wie beispielsweise Ustilago nuda oder Ustilago avenae;  
Pellicularia-Arten, wie beispielsweise Pellicularia sasakii;  
Pyricularia-Arten, wie beispielsweise Pyricularia oryzae;  
Fusarium-Arten, wie beispielsweise Fusarium culmorum;  
15 Botrytis-Arten, wie beispielsweise Botrytis cinerea;  
Uncinula-Arten, wie beispielsweise Uncinula necator;  
Septoria-Arten, wie beispielsweise Septoria nodorum;  
Leptosphaeria-Arten, wie beispielsweise Leptosphaeria nodorum;  
Cercospora-Arten, wie beispielsweise Cercospora canescens;  
20 Alternaria-Arten, wie beispielsweise Alternaria brassicae;  
Pseudocercospora-Arten, wie beispielsweise Pseudocercospora herpotrichoides.

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe der Formeln (Ia), (Ib), (Ic), (Id) und (Ie) weisen  
auch eine starke stärkende Wirkung in Pflanzen auf. Sie eignen sich daher zur Mobili-  
25 sierung pflanzeneigener Abwehrkräfte gegen Befall durch unerwünschte  
Mikroorganismen.

Unter pflanzenstärkenden (resistenzinduzierenden) Stoffen sind im vorliegenden Zu-  
sammenhang solche Substanzen zu verstehen, die in der Lage sind, das Abwehrsystem  
30 von Pflanzen so zu stimulieren, dass die behandelten Pflanzen bei nachfolgender

Inokulation mit unerwünschten Mikroorganismen weitgehende Resistenz gegen diese Mikroorganismen entfalten.

5 Unter unerwünschten Mikroorganismen sind im vorliegenden Fall phytopathogene Pilze, Bakterien und Viren zu verstehen. Die erfindungsgemäßen Stoffe können also eingesetzt werden, um Pflanzen innerhalb eines gewissen Zeitraumes nach der Behandlung gegen den Befall durch die genannten Schaderreger zu schützen. Der Zeitraum, innerhalb dessen Schutz herbeigeführt wird, erstreckt sich im allgemeinen von 1 bis 10 Tage, vorzugsweise 1 bis 7 Tage nach der Behandlung der Pflanzen mit den Wirkstoffen.

10

Die gute Pflanzenverträglichkeit der Wirkstoffe in den zur Bekämpfung von Pflanzenkrankheiten notwendigen Konzentrationen erlaubt eine Behandlung von oberirdischen Pflanzenteilen, von Pflanz- und Saatgut, und des Bodens.

15

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe der Formeln (Ia), (Ib), (Ic), (Id) und (Ie) eignen sich auch zur Steigerung des Ernteertrages. Sie sind außerdem mindertoxisch und weisen eine gute Pflanzenverträglichkeit auf.

20

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe der Formeln (Ia), (Ib), (Ic), (Id) und (Ie) können gegebenenfalls in bestimmten Konzentrationen und Aufwandmengen auch als Herbizide, zur Beeinflussung des Pflanzenwachstums, sowie zur Bekämpfung von tierischen Schädlingen verwendet werden. Sie lassen sich gegebenenfalls auch als Zwischen- und Vorprodukte für die Synthese weiterer Wirkstoffe einsetzen.

25

30

Erfindungsgemäß können alle Pflanzen und Pflanzenteile behandelt werden. Unter Pflanzen werden hierbei alle Pflanzen und Pflanzenpopulationen verstanden, wie erwünschte und unerwünschte Wildpflanzen oder Kulturpflanzen (einschließlich natürlich vorkommender Kulturpflanzen). Kulturpflanzen können Pflanzen sein, die durch konventionelle Züchtungs- und Optimierungsmethoden oder durch biotechnologische und gentechnologische Methoden oder Kombinationen dieser Methoden erhalten

werden können, einschließlich der transgenen Pflanzen und einschließlich der durch Sortenschutzrechte schützba- ren oder nicht schützba- ren Pflanzensorten. Unter Pflanzenteilen sollen alle oberirdischen und unterirdischen Teile und Organe der Pflanzen, wie Spross, Blatt, Blüte und Wurzel verstanden werden, wobei beispielhaft Blätter,  
5 Nadeln, Stängel, Stämme, Blüten, Fruchtkörper, Früchte und Samen sowie Wurzeln, Knollen und Rhizome aufgeführt werden. Zu den Pflanzenteilen gehört auch Erntegut sowie vegetatives und generatives Vermehrungsmaterial, beispielsweise Stecklinge, Knollen, Rhizome, Ableger und Samen.

Die erfindungsgemäße Behandlung der Pflanzen und Pflanzenteile mit den Wirkstoffen der Formeln (Ia), (Ib), (Ic), (Id) und (Ie) erfolgt direkt oder durch Einwirkung auf deren Umgebung, Lebensraum oder Lagerraum nach den üblichen Behandlungsmethoden, z.B. durch Tauchen, Sprühen, Verdampfen, Vernebeln, Streuen, Aufstreichen und bei Vermehrungsmaterial, insbesondere bei Samen, weiterhin durch ein- oder mehrschichtiges Umhüllen.

15

Im Materialschutz lassen sich die erfindungsgemäßen Stoffe der Formeln (Ia), (Ib), (Ic), (Id) und (Ie) zum Schutz von technischen Materialien gegen Befall und Zerstörung durch unerwünschte Mikroorganismen einsetzen.

20

Unter technischen Materialien sind im vorliegenden Zusammenhang nichtlebende Materialien zu verstehen, die für die Verwendung in der Technik zubereitet worden sind. Beispielsweise können technische Materialien, die durch erfindungsgemäße Wirkstoffe vor mikrobieller Veränderung oder Zerstörung geschützt werden sollen, Klebstoffe, Leime, Papier und Karton, Textilien, Leder, Holz, Anstrichmittel und Kunststoffartikel, Kühlschmierstoffe und andere Materialien sein, die von Mikroorganismen befallen oder zersetzt werden können. Im Rahmen der zu schützenden Materialien seien auch Teile von Produktionsanlagen, beispielsweise Kühlwasserkreisläufe, genannt, die durch Vermehrung von Mikroorganismen beeinträchtigt werden können. Im Rahmen der vorliegenden Erfindung seien als technische Materialien vorzugsweise  
25 Klebstoffe, Leime, Papiere und Kartone, Leder, Holz, Anstrichmittel, Kühlschmiermittel und Wärmeübertragungsflüssigkeiten genannt, besonders bevorzugt Holz.  
30



Als Mikroorganismen, die einen Abbau oder eine Veränderung der technischen Materialien bewirken können, seien beispielsweise Bakterien, Pilze, Hefen, Algen und Schleimorganismen genannt. Vorzugsweise wirken die erfindungsgemäßen Wirkstoffe  
5 gegen Pilze, insbesondere Schimmelpilze, holzverfärbende und holzzerstörende Pilze (Basidiomyceten) sowie gegen Schleimorganismen und Algen.

Es seien beispielsweise Mikroorganismen der folgenden Gattungen genannt:

Alternaria, wie *Alternaria tenuis*,  
10 Aspergillus, wie *Aspergillus niger*,  
Chaetomium, wie *Chaetomium globosum*,  
Coniophora, wie *Coniophora puetana*,  
Lentinus, wie *Lentinus tigrinus*,  
Penicillium, wie *Penicillium glaucum*,  
15 Polyporus, wie *Polyporus versicolor*,  
Aureobasidium, wie *Aureobasidium pullulans*,  
Sclerophoma, wie *Sclerophoma pityophila*,  
Trichoderma, wie *Trichoderma viride*,  
Escherichia, wie *Escherichia coli*,  
20 Pseudomonas, wie *Pseudomonas aeruginosa*,  
Staphylococcus, wie *Staphylococcus aureus*.

Die Wirkstoffe können in Abhängigkeit von ihren jeweiligen physikalischen und/oder chemischen Eigenschaften in die üblichen Formulierungen überführt werden, wie  
25 Lösungen, Emulsionen, Suspensionen, Pulver, Schäume, Pasten, Granulate, Aerosole, Feinstverkapselungen in polymeren Stoffen und in Hüllmassen für Saatgut, sowie ULV-Kalt- und Warmnebel-Formulierungen.

Diese Formulierungen werden in bekannter Weise hergestellt, z.B. durch Vermischen  
30 der Wirkstoffe mit Streckmitteln, also flüssigen Lösungsmitteln, unter Druck stehenden verflüssigten Gasen und/oder festen Trägerstoffen, gegebenenfalls unter Verwendung

von oberflächenaktiven Mitteln, also Emulgiermitteln und/oder Dispergiermitteln und/oder schaumerzeugenden Mitteln. Im Falle der Benutzung von Wasser als Streckmittel können z.B. auch organische Lösungsmittel als Hilfslösungsmittel verwendet werden. Als flüssige Lösungsmittel kommen im wesentlichen in Frage: Aromaten, wie

5 Xylol, Toluol oder Alkylnaphthaline, chlorierte Aromaten oder chlorierte aliphatische Kohlenwasserstoffe, wie Chlorbenzole, Chlorethylene oder Methylenchlorid, aliphatische Kohlenwasserstoffe, wie Cyclohexan oder Paraffine, z.B. Erdölfractionen, Alkohole, wie Butanol oder Glycol sowie deren Ether und Ester, Ketone, wie Aceton, Methylethylketon, Methylisobutylketon oder Cyclohexanon, stark polare Lösungsmittel, wie Dimethylformamid und Dimethylsulfoxid, sowie Wasser. Mit verflüssigten

10 gasförmigen Streckmitteln oder Trägerstoffen sind solche Flüssigkeiten gemeint, welche bei normaler Temperatur und unter Normaldruck gasförmig sind, z.B. Aerosol-Treibgase, wie Halogenkohlenwasserstoffe sowie Butan, Propan, Stickstoff und Kohlendioxid. Als feste Trägerstoffe kommen in Frage: z.B. natürliche Gesteinsmehle,

15 wie Kaoline, Tonerden, Talkum, Kreide, Quarz, Attapulgit, Montmorillonit oder Diatomeenerde und synthetische Gesteinsmehle, wie hochdisperse Kieselsäure, Aluminiumoxid und Silikate. Als feste Trägerstoffe für Granulate kommen in Frage: z.B. gebrochene und fraktionierte natürliche Gesteine wie Calcit, Marmor, Bims, Sepiolith, Dolomit sowie synthetische Granulate aus anorganischen und organischen Mehlen

20 sowie Granulate aus organischem Material wie Sägemehl, Kokosnussschalen, Maiskolben und Tabakstängel. Als Emulgier und/oder schaumerzeugende Mittel kommen in Frage: z.B. nichtionogene und anionische Emulgatoren, wie Polyoxyethylen-Fettsäureester, Polyoxyethylen-Fettalkoholether, z.B. Alkylarylpolyglycolether, Alkylsulfonate, Alkylsulfate, Arylsulfonate sowie Eiweißhydrolysate. Als Dispergiermittel kommen in

25 Frage: z.B. Lignin-Sulfitablaugen und Methylcellulose.

Es können in den Formulierungen Haftmittel wie Carboxymethylcellulose, natürliche und synthetische pulverige, körnige oder latexförmige Polymere verwendet werden, wie Gummiarabicum, Polyvinylalkohol, Polyvinylacetat, sowie natürliche Phospholipide, wie Kepheline und Lecithine, und synthetische Phospholipide. Weitere Additive

30 können mineralische und vegetabile Öle sein.

Es können Farbstoffe wie anorganische Pigmente, z.B. Eisenoxid, Titanoxid, Ferrocyanblau und organische Farbstoffe, wie Alizarin-, Azo- und Metallphthalocyanin-farbstoffe und Spurennährstoffe, wie Salze von Eisen, Mangan, Bor, Kupfer, Kobalt,  
5 Molybdän und Zink verwendet werden.

Die Formulierungen enthalten im allgemeinen zwischen 0,1 und 95 Gewichtsprozent Wirkstoff, vorzugsweise zwischen 0,5 und 90 %.

10 Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können als solche oder in ihren Formulierungen auch in Mischung mit bekannten Fungiziden, Bakteriziden, Akariziden, Nematiziden oder Insektiziden verwendet werden, um so z.B. das Wirkungsspektrum zu verbreitern oder Resistenzentwicklungen vorzubeugen. In vielen Fällen erhält man dabei syner-  
15 gistische Effekte, d.h. die Wirksamkeit der Mischung ist größer als die Wirksamkeit der Einzelkomponenten.

Als Mischpartner kommen zum Beispiel folgende Verbindungen in Frage:

**Fungizide:**

20 Aldimorph, Ampropylfos, Ampropylfos-Kalium, Andoprim, Anilazin, Azaconazol, Azoxystrobin,  
Benalaxyl, Benodanil, Benomyl, Benzamacril, Benzamacryl-isobutyl, Bialaphos, Binapacryl, Biphenyl, Bitertanol, Blasticidin-S, Bromuconazol, Bupirimat, Buthiobat,  
Calciumpolysulfid, Carpropamid, Capsimycin, Captafol, Captan, Carbendazim, Car-  
25 boxin, Carvon, Chinomethionat (Quinomethionat), Chlobenthiazon, Chlorfenazol, Chloroneb, Chloropicrin, Chlorothalonil, Chlozolinat, Clozylacon, Cufraneb, Cymo-  
xanil, Cyproconazol, Cyprodinil, Cyprofuram,  
Debacarb, Dichlorophen, Diclobutrazol, Diclofluanid, Diclomezin, Dicloran, Dietho-  
fencarb, Difenconazol, Dimethirimol, Dimethomorph, Diniconazol, Diniconazol-M,  
30 Dinocap, Diphenylamin, Dipyrithione, Ditalimfos, Dithianon, Dodemorph, Dodine, Drazoxolon,

- Ediphenphos, Epoxiconazol, Etaconazol, Ethirimol, Etridiazol,  
Famoxadon, Fenapanil, Fenarimol, Fenbuconazol, Fenfuram, Fenhexamid, Fenitropan,  
Fenpiclonil, Fenpropidin, Fenpropimorph, Fentinacetat, Fentinhydroxyd, Ferbam,  
Ferimzon, Fluazinam, Flumetover, Fluoromid, Fluquinconazol, Flurprimidol,  
5 Flusilazol, Flusulfamid, Flutolanil, Flutriafol, Folpet, Fosetyl-Aluminium, Fosetyl-  
Natrium, Fthalid, Fuberidazol, Furalaxyl, Furametpyr, Furcarbonil, Furconazol,  
Furconazol-cis, Furmecyclox,  
Guazatin, Hexachlorobenzol, Hexaconazol, Hymexazol,  
Imazalil, Imibenconazol, Iminoctadin, Iminoctadinealbesilat, Iminoctadinetriacetat,  
10 Iodocarb, Ipconazol, Iprobenfos (IBP), Iprodione, Iprovalicarb, Irumamycin,  
Isoprothiolan, Isovaledione,  
Kasugamycin, Kresoxim-methyl, Kupfer-Zubereitungen, wie: Kupferhydroxid, Kupfer-  
naphthenat, Kupferoxychlorid, Kupfersulfat, Kupferoxid, Oxin-Kupfer und Bordeaux-  
Mischung,  
15 Mancopper, Mancozeb, Maneb, Meferimzone, Mepanipyrim, Mepronil, Metalaxyl,  
Metconazol, Methasulfocarb, Methfuroxam, Metiram, Metomeclam, Metsulfovax,  
Mildiomycin, Myclobutanil, Myclozolin,  
Nickel-dimethyldithiocarbamat, Nitrothal-isopropyl, Nuarimol,  
Ofurace, Oxadixyl, Oxamocarb, Oxolinicacid, Oxycarboxim, Oxyfenthin,  
20 Paclobutrazol, Pefurazoat, Penconazol, Pencycuron, Phosdiphen, Picoxystrobin, Pima-  
ricin, Piperalin, Polyoxin, Polyoxorim, Probenazol, Prochloraz, Procymidon, Propamo-  
carb, Propanosine-Natrium, Propiconazol, Propineb, Pyraclostrobin, Pyrazophos,  
Pyrifenoxy, Pyrimethanil, Pyroquilon, Pyroxyfur,  
Quinconazol, Quintozen (PCNB), Quinoxifen  
25 Schwefel und Schwefel-Zubereitungen, Spiroxamine  
Tebuconazol, Tecloftalam, Tecnazen, Tetcyclacis, Tetraconazol, Thiabendazol,  
Thicyofen, Thifluzamide, Thiophanate-methyl, Thiram, Tioxymid, Tolclofos-methyl,  
Tolylfluand, Triadimefon, Triadimenol, Triazbutyl, Triazoxid, Trichlamid, Tricyclazol,  
Tridemorph, Trifloxystrobin, Triflumizol, Triforin, Triticonazol,  
30 Uniconazol, Validamycin A, Vinclozolin, Viniconazol,  
Zarilamid, Zineb, Ziram sowie

Dagger G, OK-8705, OK-8801,

$\alpha$ -(1,1-Dimethylethyl)- $\beta$ -(2-phenoxyethyl)-1H-1,2,4-triazol-1-ethanol,

$\alpha$ -(2,4-Dichlorphenyl)- $\beta$ -fluor- $\beta$ -propyl-1H-1,2,4-triazol-1-ethanol,

$\alpha$ -(2,4-Dichlorphenyl)- $\beta$ -methoxy- $\alpha$ -methyl-1H-1,2,4-triazol-1-ethanol,

5  $\alpha$ -(5-Methyl-1,3-dioxan-5-yl)- $\beta$ -[[4-(trifluormethyl)-phenyl]-methylen]-1H-1,2,4-triazol-1-ethanol,

(5RS,6RS)-6-Hydroxy-2,2,7,7-tetramethyl-5-(1H-1,2,4-triazol-1-yl)-3-octanon,

(E)- $\alpha$ -(Methoxyimino)-N-methyl-2-phenoxy-phenylacetamid,

1-(2,4-Dichlorphenyl)-2-(1H-1,2,4-triazol-1-yl)-ethanon-O-(phenylmethyl)-oxim,

10 1-(2-Methyl-1-naphthalenyl)-1H-pyrrol-2,5-dion,

1-(3,5-Dichlorphenyl)-3-(2-propenyl)-2,5-pyrrolidindion,

1-[(Diiodmethyl)-sulfonyl]-4-methyl-benzol,

1-[[2-(2,4-Dichlorphenyl)-1,3-dioxolan-2-yl]-methyl]-1H-imidazol,

1-[[2-(4-Chlorphenyl)-3-phenyloxiranyl]-methyl]-1H-1,2,4-triazol,

15 1-[1-[2-[(2,4-Dichlorphenyl)-methoxy]-phenyl]-ethenyl]-1H-imidazol,

1-Methyl-5-nonyl-2-(phenylmethyl)-3-pyrrolidinol,

2',6'-Dibrom-2-methyl-4'-trifluormethoxy-4'-trifluor-methyl-1,3-thiazol-5-carboxanilid,

2,6-Dichlor-5-(methylthio)-4-pyrimidinyl-thiocyanat,

2,6-Dichlor-N-(4-trifluormethylbenzyl)-benzamid,

20 2,6-Dichlor-N-[[4-(trifluormethyl)-phenyl]-methyl]-benzamid,

2-(2,3,3-Triiod-2-propenyl)-2H-tetrazol,

2-[(1-Methylethyl)-sulfonyl]-5-(trichlormethyl)-1,3,4-thiadiazol,

2-[[6-Deoxy-4-O-(4-O-methyl- $\beta$ -D-glycopyranosyl)- $\alpha$ -D-glucopyranosyl]-amino]-4-methoxy-1H-pyrrolo[2,3-d]pyrimidin-5-carbonitril,

25 2-Aminobutan,

2-Brom-2-(brommethyl)-pentandinitril,

2-Chlor-N-(2,3-dihydro-1,1,3-trimethyl-1H-inden-4-yl)-3-pyridincarboxamid,

2-Chlor-N-(2,6-dimethylphenyl)-N-(isothiocyantomethyl)-acetamid,

2-Phenylphenol(OPP),

30 3,4-Dichlor-1-[4-(difluormethoxy)-phenyl]-1H-pyrrol-2,5-dion,

3,5-Dichlor-N-[cyan[(1-methyl-2-propynyl)-oxy]-methyl]-benzamid,

- 3-(1,1-Dimethylpropyl-1-oxo-1H-inden-2-carbonitril,  
 3-[2-(4-Chlorphenyl)-5-ethoxy-3-isoxazolidinyl]-pyridin,  
 4-Chlor-2-cyan-N,N-dimethyl-5-(4-methylphenyl)-1H-imidazol-1-sulfonamid,  
 4-Methyl-tetrazolo[1,5-a]quinazolin-5(4H)-on,  
 5 8-Hydroxychinolinsulfat,  
 9H-Xanthen-9-carbonsäure-2-[(phenylamino)-carbonyl]-hydrazid,  
 bis-(1-Methylethyl)-3-methyl-4-[(3-methylbenzoyl)-oxy]-2,5-thiophendicarboxylat,  
 cis-1-(4-Chlorphenyl)-2-(1H-1,2,4-triazol-1-yl)-cycloheptanol,  
 cis-4-[3-[4-(1,1-Dimethylpropyl)-phenyl-2-methylpropyl]-2,6-dimethyl-morpholin-  
 10 hydrochlorid,  
 Ethyl-[(4-chlorphenyl)-azo]-cyanoacetat,  
 Kaliumhydrogencarbonat,  
 Methantetrathiol-Natriumsalz,  
 Methyl-1-(2,3-dihydro-2,2-dimethyl-1H-inden-1-yl)-1H-imidazol-5-carboxylat,  
 15 Methyl-N-(2,6-dimethylphenyl)-N-(5-isoxazolylcarbonyl)-DL-alaninat,  
 Methyl-N-(chloracetyl)-N-(2,6-dimethylphenyl)-DL-alaninat,  
 N-(2,6-Dimethylphenyl)-2-methoxy-N-(tetrahydro-2-oxo-3-furanyl)-acetamid,  
 N-(2,6-Dimethylphenyl)-2-methoxy-N-(tetrahydro-2-oxo-3-thienyl)-acetamid,  
 N-(2-Chlor-4-nitrophenyl)-4-methyl-3-nitro-benzolsulfonamid,  
 20 N-(4-Cyclohexylphenyl)-1,4,5,6-tetrahydro-2-pyrimidinamin,  
 N-(4-Hexylphenyl)-1,4,5,6-tetrahydro-2-pyrimidinamin,  
 N-(5-Chlor-2-methylphenyl)-2-methoxy-N-(2-oxo-3-oxazolidinyl)-acetamid,  
 N-(6-Methoxy)-3-pyridinyl)-cyclopropancarboxamid,  
 N-[2,2,2-Trichlor-1-[(chloracetyl)-amino]-ethyl]-benzamid,  
 25 N-[3-Chlor-4,5-bis-(2-propinyloxy)-phenyl]-N'-methoxy-methanimidamid,  
 N-Formyl-N-hydroxy-DL-alanin -Natriumsalz,  
 O,O-Diethyl-[2-(dipropylamino)-2-oxoethyl]-ethylphosphoramidothioat,  
 O-Methyl-S-phenyl-phenylpropylphosphoramidothioate,  
 S-Methyl-1,2,3-benzothiadiaazol-7-carbothioat,  
 30 spiro[2H]-1-Benzopyran-2,1'(3'H)-isobenzofuran]-3'-on,  
 4-(3,4-Dimethoxyphenyl)-3-(4-fluorphenyl)-acryloyl]-morpholin

**Bakterizide:**

Bronopol, Dichlorophen, Nitrapyrin, Nickel-dimethyldithiocarbamat, Kasugamycin, Othilinin, Furancarbonsäure, Oxytetracyclin, Probenazol, Streptomycin, Tecloftalam,  
5 Kupfersulfat und andere Kupfer-Zubereitungen.

**Insektizide / Akarizide / Nematizide:**

Abamectin, Acephate, Acetamiprid, Acrinathrin, Alanycarb, Aldicarb, Aldoxycarb,  
Alpha-cypermethrin, Alphamethrin, Amitraz, Avermectin, AZ 60541, Azadirachtin,  
10 Azamethiphos, Azinphos A, Azinphos M, Azocyclotin,  
Bacillus popilliae, Bacillus sphaericus, Bacillus subtilis, Bacillus thuringiensis,  
Baculoviren, Beauveria bassiana, Beauveria tenella, Bendiocarb, Benfuracarb,  
Bensultap, Benzoximate, Betacyfluthrin, Bifenazate, Bifenthrin, Bioethanomethrin,  
Biopermethrin, Bistrifluron, BPMC, Bromophos A, Bufencarb, Buprofezin,  
15 Butathiofos, Butocarboxim, Butylpyridaben,  
Cadusafos, Carbaryl, Carbofuran, Carbophenothion, Carbosulfan, Cartap,  
Chloethocarb, Chlorethoxyfos, Chlorfenapyr, Chlorfenvinphos, Chlorfluazuron,  
Chlormephos, Chlorpyrifos, Chlorpyrifos M, Chlovaporthrin, Chromafenozide, Cis-  
Resmethrin, Cispermethrin, Clocythrin, Cloethocarb, Clofentezine, Clothianidine,  
20 Cyanophos, Cycloprene, Cycloprothrin, Cyfluthrin, Cyhalothrin, Cyhexatin,  
Cypermethrin, Cyromazine,  
Deltamethrin, Demeton M, Demeton S, Demeton-S-methyl, Diafenthiuron, Diazinon,  
Dichlorvos, Dicofol, Diflubenzuron, Dimethoat, Dimethylvinphos, Diofenolan,  
Disulfoton, Docusat-sodium, Dofenapyn,  
25 Eflusilanate, Enamectin, Empenthrin, Endosulfan, Entomopffthora spp.,  
Esfenvalerate, Ethiofencarb, Ethion, Ethoprophos, Etofenprox, Etoxazole, Etrimfos,  
Fenamiphos, Fenazaquin, Fenbutatin oxide, Fenitrothion, Fenothiocarb, Fenoxacrim,  
Fenoxycarb, Fenpropathrin, Fenpyrad, Fenpyrithrin, Fenpyroximate, Fenvalerate,  
Fipronil, Fluazuron, Flubrocycythrinate, Flucycloxuron, Flucythrinate, Flufenoxuron,  
30 Flumethrin, Flutenzine, Fluvalinate, Fonophos, Fosmethilan, Fosthiazate,  
Fubfenprox, Furathiocarb,

Granuloseviren

Halofenozide, HCH, Heptenophos, Hexaflumuron, Hexythiazox, Hydroprene,  
Imidacloprid, Indoxacarb, Isazofos, Isofenphos, Isoxathion, Ivermectin,  
Kernpolyederviren, Lambda-cyhalothrin, Lufenuron,

5 Malathion, Mecarbam, Metaldehyd, Methamidophos, Metharhizium anisopliae,  
Metharhizium flavoviride, Methidathion, Methiocarb, Methoprene, Methomyl,  
Methoxyfenozide, Metolcarb, Metoxadiazon, Mevinphos, Milbemectin,  
Milbemycin, Monocrotophos,

Naled, Nitenpyram, Nithiazine, Novaluron

10 Omethoat, Oxamyl, Oxydemeton M

Paecilomyces fumosoroseus, Parathion A, Parathion M, Permethrin, Phenthoat,  
Phorat, Phosalone, Phosmet, Phosphamidon, Phoxim, Pirimicarb, Pirimiphos A,  
Pirimiphos M, Profenofos, Promecarb, Propargite, Propoxur, Prothiofos, Prothoat,  
Pymetrozine, Pyraclofos, Pyresmethrin, Pyrethrum, Pyridaben, Pyridathion,  
15 Pyrimidifen, Pyriproxyfen,

Quinalphos, Ribavirin,

Salithion, Sebufos, Silafluofen, Spinosad, Spirodiclofen, Sulfotep, Sulprofos,  
Tau-fluvalinate, Tebufenozide, Tebufenpyrad, Tebupirimiphos, Teflubenzuron,  
Tefluthrin, Temephos, Temiviphos, Terbufos, Tetrachlorvinphos, Tetradifon Theta-  
20 cypermethrin, Thiacloprid, Thiamethoxam, Thiapronil, Thiatriphos, Thiocyclam  
hydrogen oxalate, Thiodicarb, Thiofanox, Thuringiensin, Tralocyrin, Tralomethrin,  
Triarathene, Triazamate, Triazophos, Triazuron, Trichlophenidine, Trichlorfon,  
Triflumuron, Trimethacarb,

Vamidothion, Vaniliprole, Verticillium lecanii

25 YI 5302, Zeta-cypermethrin, Zolaprofos

(1R-cis)-[5-(Phenylmethyl)-3-furanyl]-methyl-3-[(dihydro-2-oxo-3(2H)-furanylidene)-  
methyl]-2,2-dimethylcyclopropanecarboxylat

(3-Phenoxyphenyl)-methyl-2,2,3,3-tetramethylcyclopropanecarboxylat

1-[(2-Chlor-5-thiazolyl)methyl]tetrahydro-3,5-dimethyl-N-nitro-1,3,5-triazin-2(1H)-  
30 imin

2-(2-Chlor-6-fluorphenyl)-4-[4-(1,1-dimethylethyl)phenyl]-4,5-dihydro-oxazol



2-(Acetyloxy)-3-dodecyl-1,4-naphthalindion

2-Chlor-N-[[[4-(1-phenylethoxy)-phenyl]-amino]-carbonyl]-benzamid

2-Chlor-N-[[[4-(2,2-dichlor-1,1-difluorethoxy)-phenyl]-amino]-carbonyl]-benzamid

3-Methylphenyl-propylcarbamat

5 4-[4-(4-Ethoxyphenyl)-4-methylpentyl]-1-fluor-2-phenoxy-benzol

4-Chlor-2-(1,1-dimethylethyl)-5-[[2-(2,6-dimethyl-4-phenoxyphenoxy)ethyl]thio]-  
3(2H)-pyridazinon

4-Chlor-2-(2-chlor-2-methylpropyl)-5-[(6-iod-3-pyridinyl)methoxy]-3(2H)-  
pyridazinon

10 4-Chlor-5-[(6-chlor-3-pyridinyl)methoxy]-2-(3,4-dichlorphenyl)-3(2H)-pyridazinon

Bacillus thuringiensis strain EG-2348

Benzoessäure [2-benzoyl-1-(1,1-dimethylethyl)-hydrazid

Butansäure 2,2-dimethyl-3-(2,4-dichlorphenyl)-2-oxo-1-oxaspiro[4.5]dec-3-en-4-yl-  
ester

15 [3-[(6-Chlor-3-pyridinyl)methyl]-2-thiazolidinyliden]-cyanamid

Dihydro-2-(nitromethylen)-2H-1,3-thiazine-3(4H)-carboxaldehyd

Ethyl-[2-[[1,6-dihydro-6-oxo-1-(phenylmethyl)-4-pyridazinyl]oxy]ethyl]-carbammat

N-(3,4,4-Trifluor-1-oxo-3-butenyl)-glycin

N-(4-Chlorphenyl)-3-[4-(difluormethoxy)phenyl]-4,5-dihydro-4-phenyl-1H-pyrazol-  
1-carboxamid

N-[(2-Chlor-5-thiazolyl)methyl]-N'-methyl-N''-nitro-guanidin

N-Methyl-N'-(1-methyl-2-propenyl)-1,2-hydrazindicarbothioamid

N-Methyl-N'-2-propenyl-1,2-hydrazindicarbothioamid

O,O-Diethyl-[2-(dipropylamino)-2-oxoethyl]-ethylphosphoramidothioat

25 N-Cyanomethyl-4-trifluormethyl-nicotinamid

3,5-Dichlor-1-(3,3-dichlor-2-propenyloxy)-4-[3-(5-trifluormethylpyridin-2-yloxy)-  
propoxy]-benzol

Auch eine Mischung mit anderen bekannten Wirkstoffen, wie Herbiziden oder mit  
30 Düngemitteln und Wachstumsregulatoren ist möglich.

5 Darüber hinaus weisen die erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) auch sehr gute antimykotische Wirkungen auf. Sie besitzen ein sehr breites antimykotisches Wirkungsspektrum, insbesondere gegen Dermatophyten und Sprosspilze, Schimmel und diphasische Pilze ( z.B. gegen Candida-Spezies wie Candida albicans, Candida glabrata) sowie Epidermophyton floccosum, Aspergillus-Spezies wie Aspergillus niger und Aspergillus fumigatus, Trichophyton-Spezies wie Trichophyton mentagrophytes, Microsporon-Spezies wie Microsporon canis und audouinii. Die Aufzählung dieser Pilze stellt keinesfalls eine Beschränkung des erfassbaren mykologischen Spektrums dar, sondern hat nur erläuternden Charakter.

10 Die Wirkstoffe können als solche, in Form ihrer Formulierungen oder den daraus bereiteten Anwendungsformen, wie gebrauchsfertige Lösungen, Suspensionen, Spritzpulver, Pasten, lösliche Pulver, Stäubemittel und Granulate angewendet werden. Die Anwendung geschieht in üblicher Weise, z.B. durch Gießen, Verspritzen, Versprühen, 15 Verstreuen, Verstäuben, Verschäumen, Bestreichen usw. Es ist ferner möglich, die Wirkstoffe nach dem Ultra-Low-Volume-Verfahren auszubringen oder die Wirkstoffzubereitung oder den Wirkstoff selbst in den Boden zu injizieren. Es kann auch das Saatgut der Pflanzen behandelt werden.

20 Beim Einsatz der erfindungsgemäßen Wirkstoffe als Fungizide können die Aufwandmengen je nach Applikationsart innerhalb eines größeren Bereiches variiert werden. Bei der Behandlung von Pflanzenteilen liegen die Aufwandmengen an Wirkstoff im allgemeinen zwischen 0,1 und 10.000 g/ha, vorzugsweise zwischen 10 und 1.000 g/ha. Bei der Saatgutbehandlung liegen die Aufwandmengen an Wirkstoff im allgemeinen 25 zwischen 0,001 und 50 g pro Kilogramm Saatgut, vorzugsweise zwischen 0,01 und 10 g pro Kilogramm Saatgut. Bei der Behandlung des Bodens liegen die Aufwandmengen an Wirkstoff im allgemeinen zwischen 0,1 und 10.000 g/ha, vorzugsweise zwischen 1 und 5.000 g/ha.

30 Wie bereits oben erwähnt, können erfindungsgemäß alle Pflanzen und deren Teile behandelt werden. In einer bevorzugten Ausführungsform werden wild

vorkommende oder durch konventionelle biologische Zuchtmethoden, wie Kreuzung oder Protoplastenfusion erhaltenen Pflanzenarten und Pflanzensorten sowie deren Teile behandelt. In einer weiteren bevorzugten Ausführungsform werden transgene Pflanzen und Pflanzensorten, die durch gentechnologische Methoden gegebenenfalls  
5 in Kombination mit konventionellen Methoden erhalten wurden (Genetic Modified Organisms) und deren Teile behandelt. Der Begriff "Teile" bzw. "Teile von Pflanzen" oder "Pflanzenteile" wurde oben erläutert.

10 Besonders bevorzugt werden erfindungsgemäß Pflanzen der jeweils handelsüblichen oder in Gebrauch befindlichen Pflanzensorten behandelt. Unter Pflanzensorten versteht man Pflanzen mit neuen Eigenschaften ("Traits"), die sowohl durch konventionelle Züchtung, durch Mutagenese oder durch rekombinante DNA-Techniken gezüchtet worden sind. Dies können Sorten, Rassen, Bio- und Genotypen sein.

15 Je nach Pflanzenarten bzw. Pflanzensorten, deren Standort und Wachstumsbedingungen (Böden, Klima, Vegetationsperiode, Ernährung) können durch die erfindungsgemäße Behandlung auch überadditive ("synergistische") Effekte auftreten. So sind beispielsweise erniedrigte Aufwandmengen und/oder Erweiterungen des Wirkungsspektrums und/oder eine Verstärkung der Wirkung der erfindungsgemäß ver-  
20 wendbaren Stoffe und Mittel, besseres Pflanzenwachstum, erhöhte Toleranz gegenüber hohen oder niedrigen Temperaturen, erhöhte Toleranz gegen Trockenheit oder gegen Wasser- bzw. Bodensalzgehalt, erhöhte Blühleistung, erleichterte Ernte, Beschleunigung der Reife, höhere Ernteerträge, höhere Qualität und/oder höherer Ernährungswert der Ernteprodukte, höhere Lagerfähigkeit und/oder Bearbeitbarkeit  
25 der Ernteprodukte möglich, die über die eigentlich zu erwartenden Effekte hinausgehen.

30 Zu den bevorzugten erfindungsgemäß zu behandelnden transgenen (gentechnologisch erhaltenen) Pflanzen bzw. Pflanzensorten gehören alle Pflanzen, die durch die gentechnologische Modifikation genetisches Material erhielten, welches diesen Pflanzen besondere vorteilhafte wertvolle Eigenschaften ("Traits") verleiht. Beispiele für

solche Eigenschaften sind besseres Pflanzenwachstum, erhöhte Toleranz gegenüber hohen oder niedrigen Temperaturen, erhöhte Toleranz gegen Trockenheit oder gegen Wasser- bzw. Bodensalzgehalt, erhöhte Blühleistung, erleichterte Ernte, Beschleunigung der Reife, höhere Ernteerträge, höhere Qualität und/oder höherer Ernährungswert der Ernteprodukte, höhere Lagerfähigkeit und/oder Bearbeitbarkeit der Ernteprodukte. Weitere und besonders hervorgehobene Beispiele für solche Eigenschaften sind eine erhöhte Abwehr der Pflanzen gegen tierische und mikrobielle Schädlinge, wie gegenüber Insekten, Milben, pflanzenpathogenen Pilzen, Bakterien und/oder Viren sowie eine erhöhte Toleranz der Pflanzen gegen bestimmte herbizide Wirkstoffe. Als Beispiele transgener Pflanzen werden die wichtigen Kulturpflanzen, wie Getreide (Weizen, Reis), Mais, Soja, Kartoffel, Baumwolle, Raps sowie Obstpflanzen (mit den Früchten Äpfel, Birnen, Zitrusfrüchten und Weintrauben) erwähnt, wobei Mais, Soja, Kartoffel, Baumwolle und Raps besonders hervorgehoben werden. Als Eigenschaften ("Traits") werden besonders hervorgehoben die erhöhte Abwehr der Pflanzen gegen Insekten durch in den Pflanzen entstehende Toxine, insbesondere solche, die durch das genetische Material aus *Bacillus Thuringiensis* (z.B. durch die Gene CryIA(a), CryIA(b), CryIA(c), CryIIA, CryIIIA, CryIIIB2, Cry9c Cry2Ab, Cry3Bb und CryIF sowie deren Kombinationen) in den Pflanzen erzeugt werden (im folgenden "Bt Pflanzen"). Als Eigenschaften ("Traits") werden auch besonders hervorgehoben die erhöhte Abwehr von Pflanzen gegen Pilze, Bakterien und Viren durch Systemische Akquirierte Resistenz (SAR), Systemin, Phytoalexine, Elicitoren sowie Resistenzgene und entsprechend exprimierte Proteine und Toxine. Als Eigenschaften ("Traits") werden weiterhin besonders hervorgehoben die erhöhte Toleranz der Pflanzen gegenüber bestimmten herbiziden Wirkstoffen, beispielsweise Imidazolinonen, Sulfonylharnstoffen, Glyphosate oder Phosphinotricin (z.B. "PAT"-Gen). Die jeweils die gewünschten Eigenschaften ("Traits") verleihenden Gene können auch in Kombinationen miteinander in den transgenen Pflanzen vorkommen. Als Beispiele für "Bt Pflanzen" seien Maissorten, Baumwollsorten, Sojasorten und Kartoffelsorten genannt, die unter den Handelsbezeichnungen YIELD GARD® (z.B. Mais, Baumwolle, Soja), KnockOut® (z.B. Mais), StarLink® (z.B. Mais), Bollgard® (Baumwolle), Nucoton® (Baumwolle) und NewLeaf® (Kartoffel) vertrieben werden.

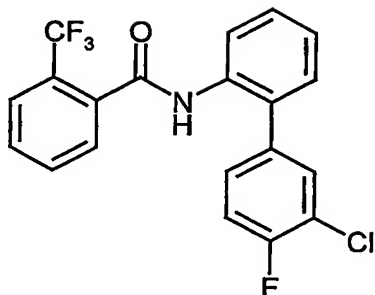
5 Als Beispiele für Herbizid tolerante Pflanzen seien Maissorten, Baumwollsorten und Sojasorten genannt, die unter den Handelsbezeichnungen Roundup Ready® (Toleranz gegen Glyphosate z.B. Mais, Baumwolle, Soja), Liberty Link® (Toleranz gegen Phosphinotricin, z.B. Raps), IMI® (Toleranz gegen Imidazolinone) und STS®  
10 (Toleranz gegen Sulfonylharnstoffe z.B. Mais) vertrieben werden. Als Herbizid resistente (konventionell auf Herbizid-Toleranz gezüchtete) Pflanzen seien auch die unter der Bezeichnung Clearfield® vertriebenen Sorten (z.B. Mais) erwähnt. Selbstverständlich gelten diese Aussagen auch für in der Zukunft entwickelte bzw. zukünftig auf den Markt kommende Pflanzensorten mit diesen oder zukünftig entwickelten genetischen Eigenschaften ("Traits").

15 Die aufgeführten Pflanzen können besonders vorteilhaft erfindungsgemäß mit den Verbindungen der allgemeinen Formeln (I), (Ia), (Ib), (Ic), (Id) und (Ie) bzw. den erfindungsgemäßen Wirkstoffmischungen behandelt werden. Die bei den Wirkstoffen bzw. Mischungen oben angegebenen Vorzugsbereiche gelten auch für die Behandlung dieser Pflanzen. Besonders hervorgehoben sei die Pflanzenbehandlung mit den im vorliegenden Text speziell aufgeführten Verbindungen bzw. Mischungen.

20 Die Herstellung und die Verwendung der erfindungsgemäßen Stoffe geht aus den folgenden Beispielen hervor.

## Herstellungsbeispiele

### Beispiel 1

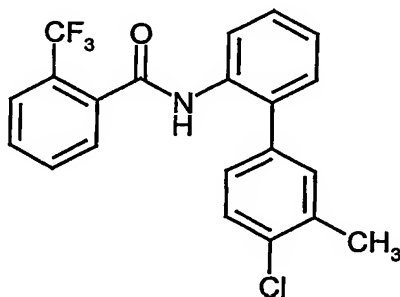


5 Verfahren A):

0,288 g (1,3 mmol) 3'-Chlor-4'-fluor-1,1'-biphenyl-2-amin werden in 3 ml Tetrahydrofuran gelöst, mit 0,36 ml (2,6 mmol) Triethylamin und 0,25 g (1,56 mmol) 2-Trifluormethylbenzoesäurechlorid (gelöst in 3 ml Tetrahydrofuran) versetzt. Die Reaktionslösung wird für 16 h bei 60°C gerührt. Zur Aufarbeitung wird aufkonzentriert und das Rohprodukt mittels Säulenchromatographie (Cyclohexan/Essigsäureethylester 2:1) gereinigt.

Man erhält 0,491 g (96 % der Theorie) *N*-(3'-Chlor-4'-fluor-1,1'-biphenyl-2-yl)-2-(trifluormethyl)benzamid mit dem logP (pH2,3) = 3,81.

### Beispiel 2



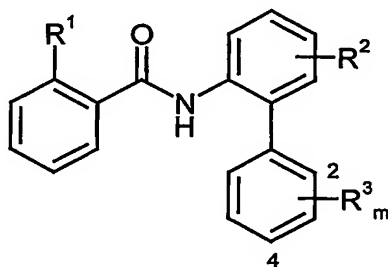
Verfahren D)

20 226 mg (1,1 mmol) 2-Chlor-5-bromtoluol werden mit 245 mg (2,5 mmol) Kaliumacetat und 279 mg (1,1 mmol) Pinacoldiboronester in 8 ml Dimethylformamid

(möglichst sauerstofffrei) gelöst und mit einer katalytischen Menge (0,1 eq.)  $\text{PdCl}_2(\text{dppf})$  versetzt. Die Reaktionsmischung wird 2 h bei 80-90°C gerührt und nach Abkühlen mit 5 eq. 2 M Natriumcarbonat-Lösung, 344 mg (1,0 mmol) des *N*-(2-Bromphenyl)-2-(trifluormethyl)benzamid (gelöst in 4 ml Dimethylformamid) und weiteren 0,1 eq. Katalysator versetzt. Die Reaktionslösung wird für 16 h bei 80-90°C gerührt. Zur Aufarbeitung wird mit 2 ml Wasser und 8 ml Essigsäureethylester versetzt. Die organische Phase wird eingengt und mittels Säulenchromatographie (Cyclohexan/Essigsäureethylester 1:1) gereinigt.

Man erhält 151 mg (39 % der Theorie) *N*-(4'-Chlor-3'-methyl-1,1'-biphenyl-2-yl)-2-(trifluormethyl)benzamid mit dem  $\log P (\text{pH} 2,3) = 4,18$ .

Analog den Beispielen 1 und 2 sowie entsprechend den allgemeinen Beschreibungen der erfindungsgemäßen Verfahren A) bis D) können die in der folgenden Tabelle genannten Verbindungen der Formel (I) erhalten werden. In der letzten Spalte der Tabelle ist angegeben, zu welcher erfindungsgemäßen Gruppe neuer Verbindungen die jeweilige Substanz gehört.



(I)

Nr.	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	m	R <sup>3</sup>	logP (pH2,3)	Gruppe
1	CF <sub>3</sub>	H	1	4-Cl		3
2	CF <sub>3</sub>	H	2	2,4-Cl <sub>2</sub>	4,00	1
3	CF <sub>3</sub>	H	2	2-CH <sub>3</sub> , 4-Cl	4,14	1
4	CF <sub>3</sub>	H	2	3,4-Cl <sub>2</sub>	4,13	1
5	CF <sub>3</sub>	H	1	4-Br	4,03	3
6	CF <sub>3</sub>	H	1	4-CF <sub>3</sub>	4,05	3

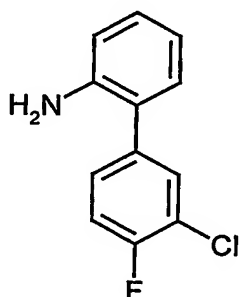
Nr.	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	m	R <sup>3</sup>	logP (pH2,3)	Gruppe
7	CF <sub>3</sub>	H	1	3-Cl	3,86	4
8	CF <sub>3</sub>	H	1	4-OCF <sub>3</sub>	4,20	3
9	CF <sub>3</sub>	H	1	4-SCH <sub>3</sub>	3,89	3
10	Cl	H	1	4-Br	3,89	3
11	Cl	H	1	4-CF <sub>3</sub>	3,89	3
12	Cl	H	1	3-Cl	3,75	4
13	Cl	H	1	4-OCF <sub>3</sub>	4,08	3
14	Cl	H	1	4-SCH <sub>3</sub>	3,75	3
15	Cl	H	1	4-F	3,40	3
16	Br	H	1	4-Br	3,91	3
17	Br	H	1	4-CF <sub>3</sub>	3,94	3
18	Br	H	1	3-Cl	3,78	4
19	Br	H	1	4-OCF <sub>3</sub>	4,08	3
20	Br	H	1	4-SCH <sub>3</sub>	3,78	3
21	Br	H	1	4-F	3,42	3
22	CH <sub>3</sub>	H	1	4-Br	3,86	3
23	CH <sub>3</sub>	H	1	4-CF <sub>3</sub>	3,86	3
24	CH <sub>3</sub>	H	1	3-Cl	3,72	4
25	CH <sub>3</sub>	H	1	4-OCF <sub>3</sub>	4,03	3
26	CH <sub>3</sub>	H	1	4-SCH <sub>3</sub>	3,72	3
27	I	H	1	4-Br	4,00	3
28	I	H	1	4-CF <sub>3</sub>	4,03	3
29	I	H	1	3-Cl	3,86	4
30	I	H	1	4-OCF <sub>3</sub>	4,21	3
31	I	H	1	4-SCH <sub>3</sub>	3,86	3
32	I	H	1	4-F	3,55	3
33	CF <sub>3</sub>	H	2	3,4-F <sub>2</sub>	3,55	1
34	CF <sub>3</sub>	H	2	3-F, 4-Cl	3,76	1
35	CF <sub>3</sub>	H	2	3-Cl, 4-F	3,81	1
36	CF <sub>3</sub>	H	2	2,4-F <sub>2</sub>	3,41	1
37	CF <sub>3</sub>	H	2	3-F, 4-OCF <sub>3</sub>	4,08	1



Nr.	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	m	R <sup>3</sup>	logP (pH2,3)	Gruppe
38	CF <sub>3</sub>	H	2	3-CF <sub>3</sub> , 4-Cl	4,18	1
39	CF <sub>3</sub>	H	2	3-CF <sub>3</sub> , 4-CH <sub>3</sub>	4,18	1
40	CF <sub>3</sub>	H	2	3-CF <sub>3</sub> , 4-OCF <sub>3</sub>	4,41	1
41	CF <sub>3</sub>	H	2	3-CF <sub>3</sub> , 4-F	3,90	1
42	CF <sub>3</sub>	H	2	3-CH <sub>3</sub> , 4-Cl	4,18	1
43	CF <sub>3</sub>	H	2	3,5-Cl <sub>2</sub>	4,16	1
44	I	H	2	3,4-Cl <sub>2</sub>	4,06	1
45	CF <sub>3</sub>	H	2	2-F, 4-Cl	3,68	1

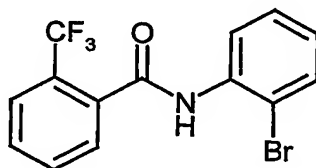
### Herstellung von Ausgangsstoffen der Formel (III)

#### 5 Beispiel (III-1)



Unter Argonatmosphäre werden 38,8 g (223 mmol) der 3-Chlor-4-fluorphenylboronsäure, 40,6 g (186 mmol) 2-Iodanilin in 220 ml Toluol, 22 ml Ethanol und 45 ml einer 4 M Natriumhydrogencarbonat-Lösung gelöst. 4,3 g (4 mmol) Tetrakis(triphenylphosphin)palladium(0) werden zugegeben und die Reaktionslösung 2-16 h auf 80°C erhitzt. Zur Aufarbeitung werden die Phasen getrennt, die organische Phase über Magnesiumsulfat getrocknet und aufkonzentriert. Die Reinigung des Rohproduktes erfolgt durch Säulenchromatographie (Cyclohexan/Essigsäureethylester 3:1) und/oder durch Umkristallisation.

Man erhält 19,8 g (4 8% der Theorie) an 3'-Chlor-4'-fluor-1,1'-biphenyl-2-amin mit dem logP (pH2,3) = 3,01.

**Herstellung von Ausgangsstoffen der Formel (IV)****Beispiel (IV-1)**

5 7,5 g (0,044 mol) 2-Bromanilin werden in 100 ml Acetonitril vorgelegt und nacheinander mit 7,8 g (0,057 mol) Kaliumcarbonat und 10,0 g (0,048 mol) 2-Trifluormethylbenzoesäurechlorid versetzt. Die Reaktionslösung wird für 16 h unter Rückfluss erhitzt. Zur Aufarbeitung wird aufkonzentriert und mit Cyclohexan/Essigsäureethylester an Kieselgel chromatographiert.

10

Man erhält 9,75 g (65 % der Theorie) *N*-(2-Bromphenyl)-2-(trifluormethyl)benzamid mit dem logP (pH2,3) = 2,99.

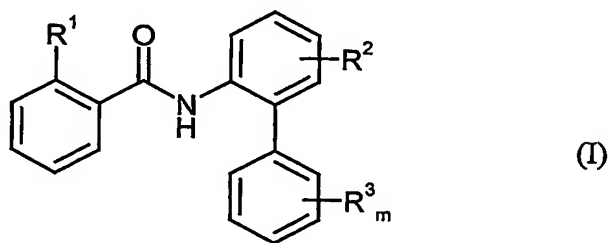
15 Die Bestimmung der in den voranstehenden Tabellen und Herstellungsbeispielen angegebenen logP-Werte erfolgt gemäß EEC-Directive 79/831 Annex V.48 durch HPLC (High Performance Liquid Chromatography) an einer Phasenumkehrsäule (C18). Temperatur: 43°C.

20 Die Bestimmung erfolgt im saurem Bereich bei pH 2.3 mit 0,1 % wässriger Phosphorsäure und Acetonitril als Eluenten; linearer Gradient von 10 % Acetonitril bis 90 % Acetonitril.

25 Die Eichung erfolgt mit unverzweigten Alkan-4-onen (mit 3 bis 16 Kohlenstoffatomen), deren logP-Werte bekannt sind (Bestimmung der logP-Werte anhand der Retentionszeit durch lineare Interpolation zwischen zwei aufeinanderfolgenden Alkanonen).

**Patentansprüche**

1. Mikrobizide Mittel, gekennzeichnet durch einen Gehalt an mindestens einem Biphenylbenzamid-Derivat der Formel (I)



in welcher

$R^1$  für Methyl, Trifluormethyl, Chlor, Brom oder Iod steht,

$R^2$  für Wasserstoff oder Fluor steht,

$R^3$  für Halogen, Cyano, Nitro,  $C_1$ - $C_6$ -Alkyl,  $C_1$ - $C_4$ -Alkoxy,  $C_1$ - $C_4$ -Alkylthio,  $C_1$ - $C_4$ -Alkylsulfonyl,  $C_2$ - $C_6$ -Alkenyl,  $C_3$ - $C_6$  Cycloalkyl, oder für  $C_1$ - $C_6$ -Halogenalkyl,  $C_1$ - $C_6$ -Halogenalkoxy,  $C_1$ - $C_6$ -Halogenalkylthio oder  $C_1$ - $C_6$ -Halogenalkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 13 Halogenatomen steht,

$m$  für 1, 2, 3, 4 oder 5 steht, wobei die Reste  $R^3$  gleich oder verschieden sein können, wenn  $m$  für 2, 3, 4 oder 5 steht,

zur Bekämpfung von phytopathogenen Schaderregern der Klassen Chytridiomycetes, Zygomycetes, Hemiascomycetes, Plectomycetes, Pyrenomycetes, Pyrenomycetes, Laboulbeniomycetes, Loculoascomycetes, Basidiomycetes und Deuteromycetes, sowie schädlicher Mikroorganismen im Materialschutz wie Pseudomonadaceae, Rhizobiaceae, Enterobacteriaceae, Corynebacteriaceae und Streptomycetaceae.

2. Mittel gemäß Anspruch 1, gekennzeichnet durch einen Gehalt an mindestens einem Biphenylbenzamid-Derivat der Formel (I), in welcher

$R^1$  für Trifluormethyl, Chlor, Brom oder Iod steht,

$R^2$  für Wasserstoff oder Fluor steht,

$R^3$  für Halogen,  $C_1$ - $C_4$ -Alkyl,  $C_1$ - $C_4$ -Alkoxy,  $C_1$ - $C_4$ -Alkylthio,  $C_2$ - $C_4$ -Alkenyl, Cyclopropyl, Cyclobutyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl, oder für  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkyl,  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkoxy oder  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkylthio mit jeweils 1 bis 9 Halogenatomen steht,

$m$  für 1, 2, 3 steht, wobei die Reste  $R^3$  gleich oder verschieden sein können, wenn  $m$  für 2 oder 3 steht.

3. Mittel gemäß Anspruch 1, gekennzeichnet durch einen Gehalt an mindestens einem Biphenylbenzamid-Derivat der Formel (I), in welcher

$R^1$  für Trifluormethyl oder Iod steht,

$R^2$  für Wasserstoff steht,

$R^3$  für Fluor, Chlor, Brom, Iod, Methyl, Ethyl,  $n$ -,  $i$ -Propyl,  $n$ -,  $i$ -,  $s$ -,  $t$ -Butyl, Methoxy, Ethoxy, Methylthio, Ethylthio, oder für  $C_1$ - $C_2$ -Halogenalkyl,  $C_1$ - $C_2$ -Halogenalkoxy oder  $C_1$ - $C_2$ -Halogenalkylthio mit jeweils 1 bis 5 Halogenatomen steht,

$m$  für 1, 2 steht, wobei die Reste  $R^3$  gleich oder verschieden sein können, wenn  $m$  für 2 steht.

4. Mittel gemäß Anspruch 1, gekennzeichnet durch einen Gehalt an mindestens einem Biphenylbenzamid-Derivat der Formel (I), in welcher

$R^1$  für Trifluormethyl oder Iod steht,

$R^2$  für Wasserstoff steht,

$R^3$  für Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Methoxy, Methylthio, Trifluormethyl, Trifluormethoxy oder Trifluormethylthio steht,

$m$  für 1, 2 steht, wobei die Reste  $R^3$  gleich oder verschieden sein können, wenn  $m$  für 2 steht.

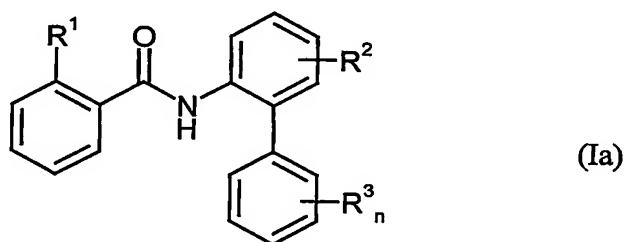
5. Mittel gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 4, zur Bekämpfung von Xanthomonas-Arten, wie beispielsweise Xanthomonas campestris pv. oryzae; Pseudomonas-Arten, wie beispielsweise Pseudomonas syringae pv. lachrymans; Erwinia-Arten, wie beispielsweise Erwinia amylovora; Erysiphe-Arten, wie beispielsweise Erysiphe graminis; Sphaerotheca-Arten, wie beispielsweise Sphaerotheca fuliginea; Podosphaera-Arten, wie beispielsweise Podosphaera leucotricha; Venturia-Arten, wie beispielsweise Venturia inaequalis; Pyrenophora-Arten, wie beispielsweise Pyrenophora teres oder P. graminea (Konidienform: Drechslera, Syn: Helminthosporium); Cochliobolus-Arten, wie beispielsweise Cochliobolus sativus (Konidienform: Drechslera, Syn: Helminthosporium); Uromyces-Arten, wie beispielsweise Uromyces appendiculatus; Puccinia-Arten, wie beispielsweise Puccinia recondita; Tilletia-Arten, wie beispielsweise Tilletia caries; Ustilago-Arten, wie beispielsweise Ustilago nuda oder Ustilago avenae; Pellicularia-Arten, wie beispielsweise Pellicularia sasakii; Pyricularia-Arten, wie beispielsweise Pyricularia oryzae; Fusarium-Arten, wie beispielsweise Fusarium culmorum; Septoria-Arten, wie beispielsweise Septoria nodorum; Leptosphaeria-Arten, wie beispielsweise Leptosphaeria nodorum; Cercospora-Arten, wie

beispielsweise *Cercospora canescens*; *Alternaria*-Arten, wie beispielsweise *Alternaria brassicae*; *Pseudocercospora*-Arten, wie beispielsweise *Pseudocercospora herpotrichoides*.

- 5 6. Verfahren zur Bekämpfung von unerwünschten Mikroorganismen gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass man Biphenylbenzamid-Derivate der Formel (I) gemäß Anspruch 1 auf die Mikroorganismen und/oder deren Lebensraum ausbringt.

- 10 7. Verfahren zum Herstellen von mikrobiziden Mitteln, dadurch gekennzeichnet, dass man Biphenylbenzamid-Derivate der Formel (I) gemäß Anspruch 1 mit Streckmitteln und/oder oberflächenaktiven Stoffen vermischt.

8. Biphenylbenzamid-Derivate der Formeln (Ia)



15 in welcher

$R^1$  für Methyl, Trifluormethyl, Chlor, Brom oder Iod steht,

20  $R^2$  für Wasserstoff oder Fluor steht,

$R^3$  für Halogen, Cyano, Nitro,  $C_1$ - $C_6$ -Alkyl,  $C_1$ - $C_4$ -Alkoxy,  $C_1$ - $C_4$ -Alkylthio,  $C_1$ - $C_4$ -Alkylsulfonyl,  $C_2$ - $C_6$ -Alkenyl,  $C_3$ - $C_6$  Cycloalkyl, oder für  $C_1$ - $C_6$ -Halogenalkyl,  $C_1$ - $C_6$ -Halogenalkoxy,  $C_1$ - $C_6$ -Halogenalkylthio oder  $C_1$ - $C_6$ -Halogenalkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 13 Halogenatomen steht,

25

n für 2, 3, 4 oder 5 steht, wobei die Reste  $R^3$  gleich oder verschieden sein können.

9. Biphenylbenzamid-Derivate der Formel (Ia) gemäß Anspruch 8, in welcher

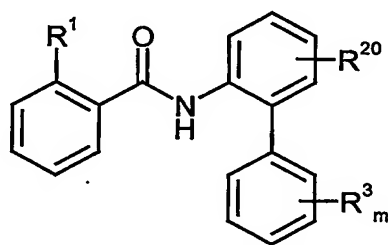
$R^1$  für Trifluormethyl, Chlor, Brom oder Iod steht,

$R^2$  für Wasserstoff oder Fluor steht,

$R^3$  für Halogen,  $C_1$ - $C_4$ -Alkyl,  $C_1$ - $C_4$ -Alkoxy,  $C_1$ - $C_4$ -Alkylthio,  $C_2$ - $C_4$ -Alkenyl, Cyclopropyl, Cyclobutyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl, oder für  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkyl,  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkoxy oder  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkylthio mit jeweils 1 bis 9 Halogenatomen steht,

n für 2, 3 steht, wobei die Reste  $R^3$  gleich oder verschieden sein können.

10. Biphenylbenzamid-Derivate der Formel (Ib)



(Ib)

in welcher

$R^1$  für Methyl, Trifluormethyl, Chlor, Brom oder Iod steht,

$R^{20}$  für Fluor steht,

$R^3$  für Halogen, Cyano, Nitro,  $C_1$ - $C_6$ -Alkyl,  $C_1$ - $C_4$ -Alkoxy,  $C_1$ - $C_4$ -Alkylthio,  $C_1$ - $C_4$ -Alkylsulfonyl,  $C_2$ - $C_6$ -Alkenyl,  $C_3$ - $C_6$ -Cycloalkyl, oder für  $C_1$ - $C_6$ -Halogenalkyl,  $C_1$ - $C_6$ -Halogenalkoxy,  $C_1$ - $C_6$ -Halogenalkylthio

oder C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Halogenalkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 13 Halogenatomen steht,

m für 1, 2, 3, 4 oder 5 steht, wobei die Reste R<sup>3</sup> gleich oder verschieden sein können, wenn m für 2, 3, 4 oder 5 steht.

11. Biphenylbenzamid-Derivate der Formel (Ib) gemäß Anspruch 10, in welcher

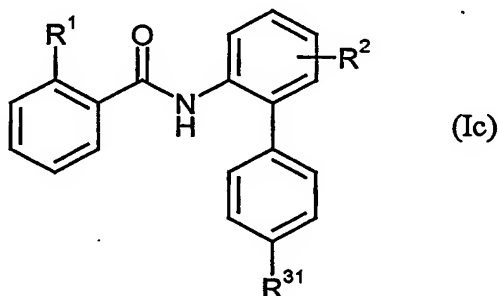
R<sup>1</sup> für Trifluormethyl, Chlor, Brom oder Iod steht,

R<sup>20</sup> für Fluor steht,

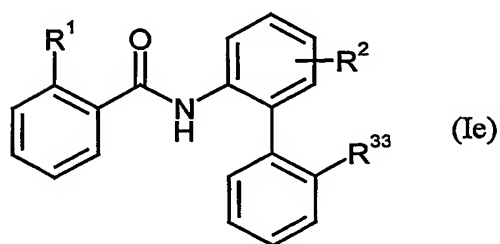
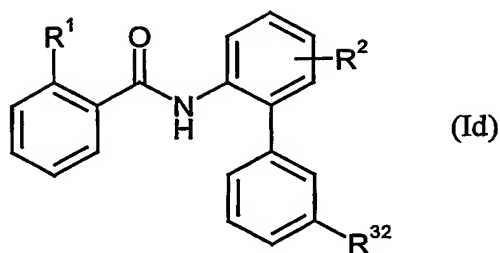
R<sup>3</sup> für Halogen, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylthio, C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub>-Alkenyl, Cyclopropyl, Cyclobutyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl, oder für C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkoxy oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkylthio mit jeweils 1 bis 9 Halogenatomen steht,

m für 1, 2, 3 steht, wobei die Reste R<sup>3</sup> gleich oder verschieden sein können, wenn m für 2 oder 3 steht.

12. Biphenylbenzamid-Derivate der Formeln (Ic), (Id) und (Ie)







in welchen jeweils

5  $R^1$  für Methyl, Trifluormethyl, Chlor, Brom oder Iod steht,

$R^2$  für Wasserstoff oder Fluor steht,

10  $R^{31}$ ,  $R^{32}$  und  $R^{33}$  unabhängig voneinander für Halogen, Cyano, Nitro,  $C_1$ - $C_6$ -Alkyl,  $C_1$ - $C_4$ -Alkoxy,  $C_1$ - $C_4$ -Alkylthio,  $C_1$ - $C_4$ -Alkylsulfonyl,  $C_2$ - $C_6$ -Alkenyl,  $C_3$ - $C_6$ -Cycloalkyl, oder für  $C_1$ - $C_6$ -Halogenalkyl,  $C_1$ - $C_6$ -Halogenalkoxy,  $C_1$ - $C_6$ -Halogenalkylthio oder  $C_1$ - $C_6$ -Halogenalkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 13 Halogenatomen stehen,

15 mit der Maßgabe, dass  $R^{31}$  und  $R^{33}$  jeweils nicht für Fluor stehen, wenn  $R^1$  für Trifluormethyl und  $R^2$  für Wasserstoff stehen.

13. Biphenylbenzamid-Derivate der Formeln (Ic), (Id) und (Ie) gemäß Anspruch 12, in welchen jeweils

20

$R^1$  für Trifluormethyl, Chlor, Brom oder Iod steht,

$R^2$  für Wasserstoff oder Fluor steht,

$R^{31}$ ,  $R^{32}$  und  $R^{33}$  unabhängig voneinander für Halogen,  $C_1$ - $C_4$ -Alkyl,  $C_1$ - $C_4$ -Alkoxy,  $C_1$ - $C_4$ -Alkylthio,  $C_2$ - $C_4$ -Alkenyl, Cyclopropyl, Cyclobutyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl, oder für  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkyl,  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkoxy oder  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkylthio mit jeweils 1 bis 9 Halogenatomen stehen,

mit der Maßgabe, dass  $R^{31}$  und  $R^{33}$  jeweils nicht für Fluor stehen, wenn  $R^1$  für Trifluormethyl und  $R^2$  für Wasserstoff stehen.

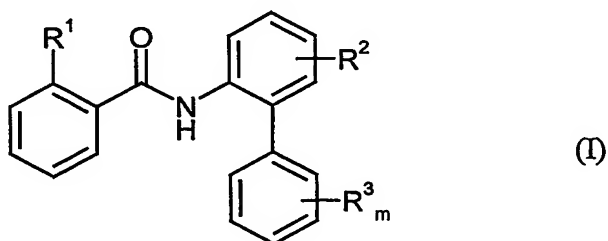
14. Mittel zum Bekämpfen unerwünschter Mikroorganismen, gekennzeichnet durch einen Gehalt an mindestens einem Biphenylbenzamid-Derivat der Formel (Ia) gemäß Anspruch 8, (Ib) gemäß Anspruch 10, (Ic), (Id) und/oder (Ie) gemäß Anspruch 12 neben Streckmitteln und/oder oberflächenaktiven Stoffen.
15. Verwendung von Biphenylbenzamid-Derivaten der Formel (Ia) gemäß Anspruch 8, (Ib) gemäß Anspruch 10, (Ic), (Id) und (Ie) gemäß Anspruch 12 zum Bekämpfen unerwünschter Mikroorganismen.
16. Verfahren zum Bekämpfen unerwünschter Mikroorganismen, dadurch gekennzeichnet, dass man Biphenylbenzamid-Derivate der Formel (Ia) gemäß Anspruch 8, (Ib) gemäß Anspruch 10, (Ic), (Id) und/oder (Ie) gemäß Anspruch 12 auf die Mikroorganismen und/oder deren Lebensraum ausbringt.
17. Verfahren zum Herstellen von Mitteln zum Bekämpfen unerwünschter Mikroorganismen, dadurch gekennzeichnet, dass man Biphenylbenzamid-Derivate der Formel (Ia) gemäß Anspruch 8, (Ib) gemäß Anspruch 10, (Ic), (Id) und/oder (Ie) mit Streckmitteln und/oder oberflächenaktiven Stoffen vermischt.

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

Mikrobizide Mittel auf Basis von Biphenylbenzamid-Derivaten

Z u s a m m e n f a s s u n g

Neue mikrobizide Mittel auf Basis von Biphenylbenzamid-Derivaten der allgemeinen Formel (I)



in welcher

$R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$  und  $m$  die in der Beschreibung angegebenen Bedeutungen haben,

sowie neue Biphenylbenzamide, mehrere Verfahren zur Herstellung dieser Stoffe und deren Verwendung zur Bekämpfung von Schädlingen, sowie neue Zwischenprodukte und Verfahren zu deren Herstellung.

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☒ **BLACK BORDERS**
- ☒ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- ☒ **FADED TEXT OR DRAWING**
- ☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- ☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- ☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- ☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**
- ☐ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- ☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- ☐ **OTHER:** \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**